

Müller, Joachim

Disbui.Frankfurt a/Mair

1989



ZUR VIELFÄLTIGKEITSTHEORIE OSTERICH ANGEREGTER
HALBBLÄTTER

Digitized by the Internet Archive
in 2026

ZUR VIELTEILCHENTHEORIE OPTISCH ANGEREGTER HALBLEITER

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades

der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik

der Johann Wolfgang Goethe-Universität

in Frankfurt am Main

von

Joachim Müller

aus Gelnhausen

Frankfurt 1989

(D F 1)

vom Fachbereich Physik der Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation
angenommen.

Dekan: Prof. Dr. B. Lüthi

Gutachter: Prof. Dr. H. Haug und Prof. Dr. R. Jelitto

Datum der mündlichen Prüfung: 16.10.1989

INHALTSVERZEICHNIS

Einleitung und Übersicht

1. Der Grundzustand eines Halbleiters

1.1	Blochfunktionen und Energiebänder eines Festkörpers	1
1.2	Modellannahmen	4
1.3	Die Blochdarstellung und die Wannierdarstellung	6

2. Die Wechselwirkungsmechanismen in einem angeregten Halbleiter

2.1	Die Coulombwechselwirkung der Ladungsträger	12
2.2	Die Gitterschwingungen des Kristalls	18
2.3	Die Wechselwirkung der Ladungsträger mit den Gitterschwingungen	21
2.4	Die Wechselwirkung der Ladungsträger mit dem Lichtfeld	25

3. Die optische Suszeptibilität eines Halbleiters

3.1	Pump- und Teststrahl-Experimente	35
3.2	Die Gleichung der optischen Polarisation	35
3.3	Abschirmung durch LO-Phononen: die ϵ_0 -Approximation	38
3.4	Die Hartree-Fock-Approximation	42
3.5	Die Wanniergleichung und die lineare optische Suszeptibilität	46

4. Zustandsformen optisch erzeugter Elektron-Loch-Paare

4.1	Virtuelle und reelle optische Anregungen	55
4.2	Optische Anregung reeller Elektron-Loch-Paare	57
4.3	Zustandsformen reeller Elektron-Loch-Paare	59
4.4	Der Einfluß reeller Anregungen auf die optischen Spektren	64

5. Korrelationseffekte zwischen optisch erzeugten Ladungsträgern

5.1	Die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger	68
5.2	Die Greenschen Funktionen der Ladungsträger	70
5.3	Die Dysongleichung der optischen Polarisation	81
5.4	Die Einteilchenselbstenergie	83
5.5	Die quasistatische Approximation der Einteilchenselbstenergie	84
5.6	Die Gleichung der optischen Polarisation in der quasistatischen Approximation	89

6.	Abschirmung und Streuung in einem Elektron-Loch-Plasma	
6.1	Die longitudinale dielektrische Funktion eines Elektron-Loch-Plasmas	92
6.2	Anregungsformen eines Elektron-Loch-Plasmas	96
6.3	Statische Abschirmung durch ein Elektron-Loch-Plasma	100
6.4	Die Plasmonpol-Approximation	102
6.5	Dynamische Abschirmung durch Plasmonen und Phononen	105
6.6	Die Einteilchenselbstenergie	109
6.7	Die Einteilchenselbstenergie in der quasistatischen Approximation	113
7.	Optische Spektren von Elektron-Loch-Plasmen	
7.1	Die optische Polarisation, die durch den Pumpstrahl hervorgerufen wird	116
7.2	Die optische Polarisation, die durch den Teststrahl hervorgerufen wird	120
7.3	Die Bethe-Salpetergleichung für die lineare optische Suszeptibilität	121
7.4	Optische Spektren unterhalb der Mottdicke	123
7.5	Das Verschwinden der Exziton-Resonanz bei der Mott-Dichte	126
7.6	Optische Verstärkung bei hoher Plasmadichte	128
8.	Der Einfluß dynamischer Korrelationseffekte auf die optischen Spektren eines Elektron-Loch-Plasmas	
8.1	Die Berücksichtigung dynamischer Korrelationseffekte	130
8.2	Der Einfluß der Verbreiterung der Zustandsdichte der Ladungsträger	136
8.3	Die frequenzabhängige Stoßverbreiterung der Spektralfunktionen	140
8.4	Plasmon-Phonon-Seitenbanden: die störungstheoretische Formel	142
8.5	Plasmon-Phonon-Seitenbanden: eine nichtstörungstheoretische Formel	146
8.6	Der Beitrag der Vertexkorrektur in der störungstheoretischen Form	147
8.7	Eine nichtstörungstheoretische Form der Vertexkorrektur	149
8.8	Die Auswertung der Theorie im entarteten Grenzfall	152
8.9	Die Auswertung der Theorie für endliche Plasmatemperaturen	160
9.	Der exzitonische optische Stark-Effekt	164
9.1	Der atomare optische Stark-Effekt	165
9.1.1	Die kohärente Dynamik des optisch angeregten Systems	165
9.1.2	Inkohärente Prozesse: die Berücksichtigung von Relaxationskonstanten	166
9.1.3	Reelle optische Übergänge nach 'Fermis goldener Regel'	167
9.1.4	Virtuelle Anregungen	169
9.1.5	Der quasistationäre atomare optische Stark-Effekt	171
9.2	Der quasistationäre exzitonische optische Stark-Effekt	180
9.2.1	Argumente für die Verwendbarkeit der Hartree-Fock-Approximation	180
9.2.2	Die Hartree-Fock-Theorie des exzitonischen optischen Stark-Effektes	182
9.2.3	Störungstheorie bezüglich der Dichte der virtuellen Ladungsträger	184
9.2.4	Die Stark-Verschiebung der Exziton-Resonanz	189
9.2.5	Die Änderung der optischen Oszillatorstärke der Exzitonresonanz	195
9.3	Der nichtstationäre optische Stark-Effekt	202

10.	Korrelationseffekte zwischen virtuellen Ladungsträgern	
10.1	Abschirmung durch virtuelle Elektron-Loch-Paare	207
10.2	Die Korrelationsselbstenergie virtueller Ladungsträger	217
10.3	Die Gleichung der optischen Polarisierung	221
10.4	Die exzitonische Korrelation virtueller Zwischenzustände	223
10.5	Die Exziton-Exziton-Wechselwirkung unter Fermionaustausch	225
10.6	Korrelationsbeiträge zur optischen Suszeptibilität des Teststrahles	230

Literaturverzeichnis

Danksagung

EINLEITUNG UND ÜBERSICHT

Das Thema dieser Arbeit sind die Veränderungen der optischen Konstanten eines Halbleiters, die sich infolge der Anregung durch intensives Laserlicht einstellen.

Bestrahlt man einen Halbleiter mit Laserlicht, so entstehen Paare von Elektronen und Löchern. Diese optisch erzeugten Ladungsträger können in Abhängigkeit von der Frequenz, der Intensität und der Dauer des anregenden Laserpulses in ganz unterschiedlicher Form vorliegen. In Anwesenheit der Elektron-Loch-Paare verändern sich die optischen Eigenschaften des Materials in einer für die jeweilige Zustandsform der Ladungsträger charakteristischen Weise. Daher liefert die experimentelle Untersuchung der optischen Spektren hochangeregter Halbleiter Informationen über das Wechselwirkungsverhalten und über die Relaxationsprozesse der erzeugten Ladungsträger. Darüberhinaus besteht die Möglichkeit, die optischen Konstanten eines Halbleiters gezielt mit Hilfe von intensivem Laserlicht zu beeinflussen und auf diese Weise die Ausbreitung eines Lichtstrahles mit Hilfe eines zweiten Lichtstrahles zu kontrollieren. Hierbei spielt vor allem der Effekt der optischen Bistabilität eine wichtige Rolle. In einer optisch bistabilen Anordnung genügt eine relativ kleine Veränderung der Anregungsintensität, um das System von einem lichtdurchlässigen Zustand in einen lichtundurchlässigen Zustand zu versetzen. Man beabsichtigt, solche Effekte in der Datenverarbeitung in Form von optischen Schaltelementen technisch nutzbar zu machen.

Liegt die Frequenz des anregenden Laserstrahls im Absorptionsbereich des Halbleiters, so reicht die Energie der eingestrahnten Lichtquanten aus, um dauerhaft Elektron-Loch-Paare zu erzeugen. In diesem Fall spricht man von resonanter optischer Anregung und von der Erzeugung reeller Ladungsträger. Charakteristisch für reelle Ladungsträger ist, daß sie nach dem Abklingen des anregenden Laserstrahls weiterexistieren können und erst gemäß ihrer natürlichen Lebensdauer zerfallen. Mit der Veränderung der Zustandsform reeller Elektron-Loch-Paare, etwa durch Variation der Teilchendichte durch Veränderung der Anregungsintensität, können ausgeprägte Veränderungen der optischen Konstanten des Halbleiters verbunden sein. Eine Regelung der optischen Konstanten eines Halbleiters durch Variation der Dichte reeller Ladungsträger kann jedoch nicht auf einer kürzeren Zeitskala als der mittleren Lebensdauer der Ladungsträger erfolgen. Die Lebensdauer von Elektron-Loch-Paaren in Halbleitern liegt in der Größenordnung von Nanosekunden. Dies ist im Vergleich zu der Pulsdauer moderner Laserapparaturen, die im Femtosekundenbereich liegen kann, eine relativ lange Zeit. Im Bestreben, eine Veränderung der optischen Konstanten eines Halbleiters auf einer kürzeren Zeitskala als der Lebensdauer reeller Elektron-Loch-Paare zu ermöglichen, untersucht man seit einiger Zeit auch Effekte, die durch eine kohärente optische Anregung eines Halbleiters in seinem Transparenzgebiet verursacht werden.

Liegt die Frequenz des anregenden Laserstrahls im Transparenzgebiet des Halbleiters, so wird die Materie zwar in einen optisch polarisierten Zustand versetzt, die Energie eines Photons reicht jedoch nicht aus, um ein Elektron-Loch-Paar dauerhaft zu erzeugen. Ladungsträgerpaare entstehen in diesem Fall nur kurzzeitig und vergehen sogleich wieder. Dies ist die quantenoptische Beschreibung der gekoppelten Schwingung zwischen dem Laserfeld und der optisch polarisierten Materie. Man spricht in diesem Fall von nichtresonanter optischer Anregung und von der Erzeugung virtueller Elektron-Loch-Paare. Charakteristisch für virtuelle Ladungsträger ist, daß sie nur für die Dauer des

anregenden Lichtfeldes vorhanden sind. Die Beeinflussung der optischen Konstanten eines Halbleiters durch nichtresonante Anregung kann daher auf der Zeitskala der kürzesten zur Verfügung stehenden Laserpulse erfolgen. Allerdings sind bei der nichtresonanten Anregung im Vergleich zur resonanten Anregung höhere Laserintensitäten erforderlich, um vergleichbar starke Effekte zu erzielen.

Diese Arbeit gibt eine einheitliche theoretische Beschreibung des Einflusses reeller und virtueller Ladungsträger auf die optischen Spektren von Halbleitern.

In den ersten beiden Kapiteln wird ein einfaches mathematisches Modell eines Halbleiters und der Wechselwirkungsmechanismen der Ladungsträger untereinander sowie mit den Gitterschwingungen und dem Lichtfeld formuliert.

In Kapitel 3 wird eine Gleichung für die Bestimmungsgröße des Problems, die optische Polarisation des Halbleiters, aufgestellt. Anschließend wird eine erste wichtige Näherung, die sogenannte ϵ_0 -Approximation, erläutert, die die näherungsweise Elimination der Gitterschwingungen als dynamischer Variablen aus dem Problem ermöglicht. Zur Behandlung der Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander wird in einem ersten Schritt die sogenannte Hartree-Fock-Approximation durchgeführt. Im Rahmen dieser Näherung reagiert eine Ladung lediglich auf ein gemitteltes Feld der übrigen Ladungsträger. Diese Näherung erweist sich nur in wenigen Fällen tatsächlich als gerechtfertigt, da Ladungsträger empfindlich auf die unmittelbare Nähe anderer Ladungen reagieren. Eine wichtige Aufgabe besteht deshalb in der Berechnung von Korrekturen zur Hartree-Fock-Approximation. Später in Kapitel 10 wird allerdings begründet werden, daß diese einfache Näherung zur Behandlung virtueller Ladungsträger gerechtfertigt ist. Zum Abschluß des einführenden Kapitels 3 wird die lineare optische Suszeptibilität eines Halbleiters, die bekannte Elliott-Formel, hergeleitet. Diese Formel bildet einen günstigen Ausgangspunkt zur Diskussion der erforderlichen Erweiterungen der Theorie.

Kapitel 4 gibt einen Überblick über die verschiedenen Zustandsformen, in denen sich Elektron-Loch-Paare im Halbleiter befinden können. Besondere Bedeutung für die optischen Eigenschaften von Halbleitern besitzen wasserstoffartige Paarzustände aus Elektronen und Löchern, die sogenannten Wannier-Exzitonen. Solche gebundenen Paarzustände sind bei niedrigen Ladungsträgerdichten und nicht zu hohen Kristalltemperaturen stabil. Unter solchen Bedingungen weist das Absorptionsspektrum eines Halbleiters eine ausgeprägte Resonanz auf, die die Entstehung von Exzitonen durch Absorption von Photonen anzeigt. Mit zunehmender Teilchendichte kommt es zu einer Destabilisierung gebundener Elektron-Loch-Paare, und oberhalb einer kritischen Ladungsträgerdichte, der sogenannten Mott-Dichte, können gar keine gebundenen Elektron-Loch-Paare mehr existieren. Die Ladungsträger bilden dann ein vollständig ionisiertes Elektron-Loch-Plasma mit metallischen Eigenschaften. Mit den optischen Spektren gehen in diesem Dichtebereich besonders ausgeprägte Veränderungen vor. Überschreitet die Ladungsträgerdichte die Mott-Dichte, so kommt es zu einem starken Ausbleichen und schließlich zum völligen Verschwinden der Exzitonresonanz.

Eine der Ursachen für die Schwächung der Bindung zwischen Elektronen und Löchern mit zunehmender Anregungsdichte ist die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger. In der unmittelbaren Umgebung eines Elektrons etwa sammeln sich vermehrt Löcher an, wohingegen die Ladungsträger die unmittelbare Nähe gleichartiger Ladungen meiden. Durch diesen Effekt kommt es zu einer Schwächung und zu einer Verringerung der Reichweite der effektiv zwischen den Ladungsträgern wirksamen Kräfte. Im Rahmen der Hartree-Fock-Theorie ist der Effekt der gegenseitigen Abschirmung der Ladungsträger gar nicht berücksichtigt, denn in dieser Approximation reagieren die einzelnen Ladungen

lediglich auf ein gemitteltes Feld der übrigen Teilchen. Die wichtigste Erweiterung der Theorie der optischen Polarisation eines Halbleiters besteht deshalb in der Berücksichtigung von Abschirmungseffekten.

Zur Formulierung einer Vielteilchentheorie, die über die Hartree-Fock-Approximation hinausgeht, ist die mathematische Technik der Greenschen Funktionen ein besonders nützliches Hilfsmittel. In diesem Formalismus wird die Wechselwirkung der Teilchen durch sogenannte Selbstenergiefunktionen beschrieben. In Kapitel 5 wird die Gleichung der optischen Polarisation mit Hilfe der Greenschen Funktionen neu formuliert und eine oftmals angewendete Näherung der Selbstenergie der Ladungsträger angegeben, die den Effekt der Abschirmung berücksichtigt.

Durch die Berücksichtigung der Abschirmung wird die Gleichung der optischen Polarisation wesentlich komplizierter. Die Ursache hierfür ist, daß die ständigen Umordnungsprozesse, die mit der gegenseitigen Abschirmung der in Bewegung befindlichen Ladungsträger verbunden sind, nicht instantan erfolgen, sondern eine gewisse Zeit benötigen. Unter Umständen kann es jedoch eine sinnvolle Näherung sein, diese zeitlichen Retardierungseffekte zu vernachlässigen. In den verbleibenden Abschnitten des Kapitels 5 wird eine oftmals angewendete Approximation der Selbstenergie und der Gleichung der optischen Polarisation diskutiert, im Rahmen derer die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger als instantan angenähert wird.

In Kapitel 6 werden die Anregungsformen und die abschirmende Wirkung eines Elektron-Loch-Plasmas diskutiert. Mit Hilfe der Ergebnisse dieses Kapitels wird in Kapitel 7 die Theorie der optischen Spektren im Bereich des Mott-Übergangs und die Theorie der optischen Verstärkung durch ein Elektron-Loch-Plasma formuliert. Hier werden bekannte Ergebnisse diskutiert, die in der Näherung instantaner Abschirmung gewonnen wurden.

In der Regel findet man im Rahmen der Näherung instantaner Abschirmung gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment. Einer der Effekte, die durch diese Approximation allerdings nicht erfaßt werden, ist die inelastische Streuung der Ladungsträger. In einem dichten Elektron-Loch-Plasma spielt vor allem die Streuung der Ladungsträger an kollektiven Plasmaschwingungen und an polar-optischen Gitterschwingungen eine wichtige Rolle. Diese Streuprozesse der Elektronen und Löcher bewirken eine Stoßverbreiterung der optischen Spektren. Meist läßt sich diese Verbreiterung befriedigend in Form von phänomenologischen Dämpfungskonstanten berücksichtigen. Man hat jedoch auch Spektren der optischen Verstärkung durch Elektron-Loch-Plasmen gemessen, die in den von der Stoßverbreiterung herrührenden Ausläufern Resonanzstrukturen aufweisen. Es wurde vermutet, daß es sich bei diesen Strukturen um Seitenbanden des optischen Spektrums handelt, die von der Rekombination von Elektron-Loch-Paaren unter gleichzeitiger Emission von Plasmonen und Phononen herrühren. In Kapitel 8 stelle ich meine Theorie der Plasmon-Phonon-Seitenbanden des Spektrums der optischen Verstärkung durch ein Elektron-Loch-Plasma dar, die diese Interpretation bestätigt.

In den Kapiteln 9 und 10 werden die physikalischen Eigenschaften virtueller Ladungsträger und deren Wirkung auf die optischen Spektren von Halbleitern diskutiert. Das Kapitel 9 behandelt die Hartree-Fock-Theorie des exzitonen optischen Stark-Effektes. Dieser Effekt, der erstmals im Jahre 1986 nachgewiesen wurde, hat unter Halbleiterphysikern einiges Aufsehen hervorgerufen. Einer der Gründe für die Beachtung, die dieser Effekt fand, besteht darin, daß hier erstmals eine deutliche optisch induzierte Verschiebung der Exzitonresonanz bewirkt werden konnte. Diese Verschiebung wird durch intensive kohärente Anregung eines Halbleiters in seinem Transparenzgebiet verursacht. Beindruckend sind aber auch die enorm kurzen Ansprechzeiten, die bei



diesem Effekt auftreten. Man wies nach, daß die Stark-Verschiebung der Exzitonresonanz den kürzesten Laserpulsen, über die man derzeit verfügt, praktisch instantan folgt. Damit bietet der exzitonische optische Stark-Effekt eine Möglichkeit zur Herstellung besonders schneller optischer Schaltelemente.

Gerade mit der Verwendung ultrakurzer Laserpulse, die den exzitonischen optischen Stark-Effekt aus der Sicht der angewandten Physik interessant machen, sind allerdings erhebliche Probleme in der korrekten Interpretation der experimentellen Ergebnisse und in der theoretischen Beschreibung dieses Effektes verbunden. Da die beobachteten Veränderungen der Exzitonresonanz qualitativ dem Verhalten der optischen Resonanz eines kohärent und stationär getriebenen Zweiniveaumodells entsprechen, interpretierte man die experimentellen Ergebnisse zunächst in diesem einfachen Bild. Die in unserer Arbeitsgruppe durchgeführte Auswertung der Vielteilchentheorie des exzitonischen optischen Stark-Effektes zeigte jedoch, daß dieser Effekt weder mit einem Zweiniveaumodell noch im Rahmen einer stationären Theorie beschrieben werden kann. Beide unrichtigen Annahmen zusammen hatten zufälligerweise ein scheinbar korrektes Bild ergeben. Dieses Ergebnis zeigt, daß eine einwandfreie Verifikation der bestehenden Theorien gegenwärtig nicht möglich ist, da sich in den durchgeführten Experimenten unterschiedliche Effekte überlagern.

Hilfreich zur genaueren Überprüfung der theoretischen Vorhersagen wären vor allem Untersuchungen zum exzitonischen optischen Stark-Effekt unter quasistationären Bedingungen, d.h. die Messung dieses Effektes unter Verwendung länger andauernder Laserpulse. Solche Untersuchungen wurden jedoch bisher nicht publiziert. Ein Grund hierfür besteht vermutlich darin, daß der exzitonische Stark-Effekt aus der Sicht der angewandten Physik gerade aufgrund der enorm kurzen Ansprechzeiten attraktiv ist. Ferner wurde argumentiert, daß der Nachweis eines kohärenten optischen Effektes im Halbleiter überhaupt nur möglich sei, sofern die Pulsdauer der verwendeten Laserstrahlen die typischen Streuzeiten von Ladungsträgern in Halbleitern unterschreitet, da die Stoßprozesse der Ladungsträger die Kohärenz von optischen Polarisationschwingungen zerstören. Dieses Argument ist richtig, trifft jedoch nur auf reelle Ladungsträger zu. In Kapitel 10 wird eine Theorie der Abschirmung und Streuung in einem stationären System virtueller Elektron-Loch-Paare entwickelt. Dort wird gezeigt, daß virtuelle Ladungsträger nur einen schwachen dielektrischen Beitrag zur Abschirmung liefern und praktisch gar nicht an Streuprozessen teilnehmen können. Durch diese Untersuchung soll plausibel werden, daß der stark nichtresonante exzitonische optische Stark-Effekt tatsächlich auch unter quasistationären Bedingungen nachweisbar sein könnte.

1. DER GRUNDZUSTAND EINES HALBLEITERS

In diesem Kapitel werden die grundlegenden Definitionen zur theoretischen Beschreibung eines Halbleiters angegeben. Dabei sei zunächst an einen räumlich ausgedehnten Kristall gedacht, dessen Abmessungen in allen Richtungen sehr groß seien gegen die Länge einer einzelnen Gitterzelle. Auf die besonderen Effekte, die von der Einschränkung der Bewegungsfreiheitsgrade von Ladungsträgern in Halbleiterschichtstrukturen herrühren, wird an geeigneter Stelle eingegangen.

1.1 Blochfunktionen und Energiebänder eines Festkörpers

In vielen Festkörpern läßt sich eine eindeutige Unterscheidung treffen zwischen den sogenannten Rumpfelektronen, die fest an einzelne Gitterionen gebunden sind, und den delokalisierten Valenzelektronen, die die chemische Bindung herstellen. Die Valenzelektronen bewegen sich im Coulomb-Potential der Gitterionen, welche Schwingungen um ihre Gleichgewichtslagen vollführen. Die Ruhelagen der Ionenrümpfe bilden das periodische Kristallgitter. Zwar befinden sich die Ionen infolge der Heisenbergschen Unschärferelation selbst am absoluten Nullpunkt der Temperatur niemals völlig in Ruhe. Dennoch ist es vorteilhaft, ihr Potential zu zerlegen in den periodischen Anteil eines starren Gitters, und in den Anteil, der von den Gitterschwingungen herrührt. Das erste Teilproblem zur Lösung der Schrödingergleichung des Kristalls besteht dann in der Bewegung der Valenzelektronen im periodischen Potential der Ionen. Später (s. Abschnitt 2.3) ist die Wechselwirkung der Kristallelektronen mit den Quanten der Gitterschwingungen, den Phononen, zu behandeln.

Durch die Coulomb-Wechselwirkung der Valenzelektronen untereinander verbleibt die Bewegung der Elektronen im Kristallgitter ein kompliziertes Vielteilchenproblem. Man kann es jedoch näherungsweise auf ein effektives Einteilchenproblem zurückführen, indem man die Wechselwirkung eines Valenzelektrons mit allen übrigen durch die Wechselwirkung des Elektrons mit der gemittelten Ladungsverteilung ersetzt. Dies wird beispielsweise im Rahmen einer Hartree-Fock-Näherung [1, §3] erreicht. Die Schwierigkeit besteht dann nur noch darin, daß das so gebildete gemittelte Potential in selbstkonsistenter Weise von der Lösung des Einteilchenproblems abhängt. Es besitzt aber ebenfalls die Symmetrie des Gitters.

Sei $U(r)$ das periodische Potential, das gemeinsam von den Ionenrümpfen und von der gemittelten Ladungsverteilung der Valenzelektronen gebildet wird. Die stationäre Einteilchen-Schrödingergleichung für die Wellenfunktion ϕ eines Kristallelektrons lautet dann

$$H_0 \phi(r) = \epsilon \phi(r) \quad (1.1)$$

mit dem Energieeigenwert ϵ und dem Hamiltonoperator

$$H_0 = \frac{\mathbf{p}^2}{2m_0} + U(\mathbf{r}) + \frac{\mathbf{s} \cdot [\nabla U(\mathbf{r}) \times \mathbf{p}]}{2m_0^2 c^2}. \quad (1.2)$$

Im Hamiltonoperator (1.2) sind $\mathbf{p} = \nabla/i$ der Impulsoperator (mit $\hbar=1$), m_0 die Ruhemasse eines freien Elektrons und c die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Der Term proportional zum Spinoperator $\mathbf{s}$ beschreibt die Spin-Bahn-Kopplung [2, §54].

Ist $\mathbf{t}$ ein Gittervektor, d.h. ein Translationsvektor, der ein (unendlich weit ausgedehnt bzw. periodisch fortgesetzt gedachtes) Kristallgitter mit sich selbst zur Deckung bringt, so gilt für das periodische Potential $U(\mathbf{r})$ im Hamiltonoperator (1.2)

$$U(\mathbf{r}+\mathbf{t}) = U(\mathbf{r}). \quad (1.3)$$

Hieraus läßt sich das Blochsche Theorem [1, S. 69] ableiten, welches besagt, daß die Lösungen der Schrödingergleichung (1.1) von der Form

$$\phi_{\rho\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{\rho\mathbf{k}}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \quad (1.4)$$

sind. Hierin ist $u_{\rho\mathbf{k}}$ eine gitterperiodische Funktion,

$$u_{\rho\mathbf{k}}(\mathbf{r}+\mathbf{t}) = u_{\rho\mathbf{k}}(\mathbf{r}). \quad (1.5)$$

Sie beschreibt das lokale Verhalten der Wellenfunktion innerhalb einer Gitterzelle. Hinzu tritt in der Blochfunktion (1.4) der globale Faktor $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ einer ebenen Welle, der die Beweglichkeit und Delokalisierung der Valenzelektronen anzeigt. Die Quantenzahl $\mathbf{k}$ ist der Wellenvektor des Kristallelektrons. Diese Größe ist nur bis auf reziproke Gittervektoren eindeutig bestimmt, spielt aber ansonsten die Rolle des Elektronimpulses. Die Quantenzahl ρ ist der Bandindex. Sie indiziert die Energiebänder $\epsilon_{\rho\mathbf{k}}$ des Kristalls, die aus den Energieniveaus der einzelnen Atome bzw. Moleküle bei der Kondensation zum Festkörper entstehen.

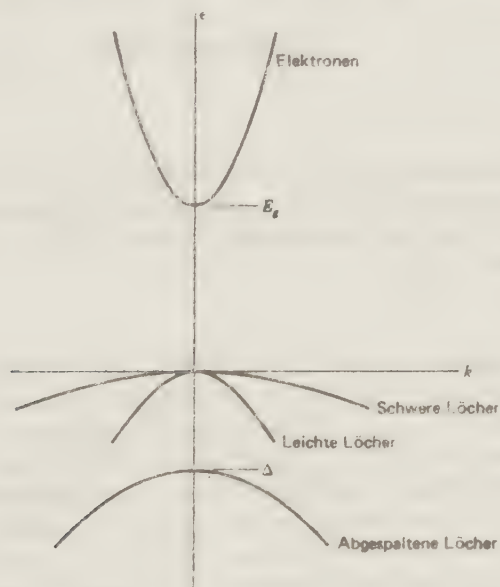
Die Wellenfunktionen $\phi_{\rho\mathbf{k}}$ bilden ein vollständiges, orthonormales Funktionensystem. Mit Hilfe der Hilbertraumvektoren $|\rho\mathbf{k}\rangle = \hat{\phi}_{\rho\mathbf{k}}$ lautet die Vollständigkeitsrelation

$$1 = \sum_{\rho\mathbf{k}} |\rho\mathbf{k}\rangle \langle \rho\mathbf{k}|. \quad (1.6)$$

Die Normiertheit und Orthogonalität schreibt sich

$$\langle \rho \mathbf{k} | \rho' \mathbf{k}' \rangle = \delta_{\rho\rho'} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \quad (1.7).$$

Die Energiebänder $\epsilon_{\rho\mathbf{k}}$ eines Halbleiters, der sich in seinem Grundzustand befindet, sind nach dem Pauliprinzip bis zum sogenannten Valenzband vollständig mit Elektronen gefüllt. Darüber liegt, von einer Energielücke E_g getrennt, das Leitungsband, das in reinen Halbleitern im Grundzustand leer ist. In dieser Arbeit werden vorwiegend direkte Halbleiter betrachtet. Das sind solche, bei denen im Impulsraum am Γ -Punkt ($\mathbf{k}=0$) das absolute Leitungsbandminimum und das absolute Valenzbandmaximum liegen. Die Bezeichnung 'direkt' besagt, daß in diesen Substanzen die energetisch niedrigsten optischen Anregungen ohne Beteiligung von Schwingungsquanten des Kristallgitters ablaufen (s. Abschnitt 2.4). In technischer Hinsicht spielen heute die Halbleiter der III-V-Gruppe eine große Rolle, unter diesen vor allem die Verbindung Galliumarsenid (GaAs). Figur 1.1 zeigt schematisch die Bandstruktur in der Nähe des Γ -Punktes, wie sie in diesen Substanzen vorliegt [3, S. 245].



Figur 1.1. Vereinfachte Darstellung der Struktur der Bandkante in einem Halbleiter mit direkter Bandlücke.

Das zweifach energetisch entartete Leitungsband ($\rho=c$) entstammt einem atomaren s-Orbital, und die drei ebenfalls jeweils zweifach energetisch entarteten Valenzbänder sind aus einem p-Orbital entstanden. In einem p-Orbital (Bahndrehimpuls $\ell=1$) bewirkt die Spin-Bahn-Wechselwirkung in Gleichung (1.2) die Aufhebung der Entartung zwischen den Zuständen mit Gesamtdrehimpuls $j=\ell+s=3/2$ und $j=\ell-s=1/2$. Dies führt zu einer Energielücke zwischen dem sogenannten SO-Band (SO='spin-orbit'), welches aus den

Zuständen mit dem Drehimpuls $j=1/2$ entsteht, und den Bändern der schweren und der leichten Löcher, denen der Wert $j=3/2$ zuzuordnen ist. Die Bänder der schweren und der leichten Löcher unterscheiden sich in der z-Komponente des Drehimpulses. Die Werte $j_z=\pm 3/2$ gehören zu den schweren Löchern, während den leichten Löchern die Werte $j_z=\pm 1/2$ zuzuordnen sind [4, Glg. (2.1.8) ff.]. Diese Bänder sind am Γ -Punkt energetisch miteinander entartet, spalten aber für endliche k -Werte auf.

Da das Potential $U(r)$ die Symmetrie des Rumpfgitters besitzt, lassen sich mit Hilfe der Gruppentheorie weitreichende qualitative Aussagen zur Form der Energiebänder $\epsilon_{\rho k}$ machen [1, §26]. Quantitative Berechnungen von Bandstrukturen erfordern allerdings einen großen numerischen Aufwand. Solche Berechnungen sind nicht Thema dieser Arbeit. Vielmehr werden hier die Bandstruktur und die Blochfunktionen eines Halbleiters, der sich im Grundzustand befindet, als gegeben vorausgesetzt. Darauf aufbauend werden Renormierungen berechnet, die sich durch optische Anregung eines Halbleiters in einen Nichtgleichgewichtszustand einstellen.

1.2 Modellannahmen

Zur theoretischen Beschreibung von Vielteilcheneffekten ist es sinnvoll, von einem möglichst einfachen physikalischen Modell auszugehen. Es werden deshalb eine Reihe von Näherungen verwendet, die für quantitative Berechnungen unter Umständen teilweise zurückgenommen werden müssen:

1) Eine Näherung besteht darin, den Einfluß von weiteren, in Figur 1.1 nicht eingezeichneten Energiebändern auf die dielektrischen Eigenschaften des Halbleiters nicht explizit, sondern nur in Form einer dielektrischen Konstanten ϵ_{∞} zu berücksichtigen. Bei dieser Größe handelt es sich auf der Skala optischer Frequenzen um den hochfrequenten Grenzwert der dielektrischen Funktion. Weitere Energiebänder nicht explizit in die Theorie einzubeziehen ist gerechtfertigt, falls deren energetischer Abstand zu Leitungs- und Valenzbändern groß ist im Vergleich zu den in der Rechnung auftretenden Energiedifferenzen. Mit derselben Begründung kann unter Umständen auch das SO-Band außer acht gelassen werden.

2) Die Bänder der schweren und der leichten Löcher können bei der Berechnung von optischen Spektren streng genommen nicht getrennt voneinander behandelt werden, denn nur bei schwacher Anregungsintensität kommt es zu einer einfachen Überlagerung der Beiträge dieser Bänder. Eine gewisse Selektierung der Beiträge von schweren und leichten Löchern zu den optischen Spektren läßt sich jedoch aufgrund des Vektorcharakters der optischen Matrixelemente erreichen (s. Abschnitt 2.4). Ferner besitzt das Band der schweren Löcher die größere Zustandsdichte und damit das größere spektrale Gewicht. In Halbleiterschichtstrukturen ist zudem die energetische Entartung der schweren und der leichten Löcher am Γ -Punkt aufgehoben [5]. Mit Einschränkung kann es deshalb gerechtfertigt sein, das theoretische Modell auf ein Leitungsband und ein Valenzband zu beschränken, wobei beide Bänder jeweils zweifach energetisch entartet seien.

3) Eine weitere rechnerische Vereinfachung ergibt sich aus der Modellannahme, daß die Elektronen in den betrachteten Energiebändern einen eindeutigen Spinzustand besitzen, wie es für das Leitungsband und für das Band der schweren Löcher, nicht aber für das Band der leichten Löcher der Fall ist [6, Glg. (3.13)]. Dann können Bandindex und Spin als separate Quantenzahlen geführt werden, und die Orthogonalitätsrelation (1.7) lautet

$$\langle \rho \mathbf{k} s | \rho' \mathbf{k}' s' \rangle = \delta_{\rho \rho'} \delta_{\mathbf{k} \mathbf{k}'} \delta_{ss'}. \quad (1.8)$$

4) Unter allen in dieser Arbeit betrachteten Anregungsbedingungen spielen sich die relevanten physikalischen Prozesse im Vergleich zur Ausdehnung der ersten Brillouinzone in relativer Nähe des Γ -Punktes ab. Deshalb kann eine quadratische Entwicklung der Energien $\epsilon_{\rho \mathbf{k}}$ um den Punkt $\mathbf{k}=0$ verwendet werden:

$$\epsilon_{c\mathbf{k}} \simeq E_g + \frac{1}{2} \sum_{ij} (m_c^{-1})_{ij} k_i k_j, \quad (1.9a)$$

$$\epsilon_{v\mathbf{k}} \simeq \frac{1}{2} \sum_{ij} (m_v^{-1})_{ij} k_i k_j. \quad (1.9b)$$

Hierin ist

$$(m_{\rho}^{-1})_{ij} = \left. \frac{\partial^2 \epsilon_{\rho \mathbf{k}}}{\partial k_i \partial k_j} \right|_{\mathbf{k}=0} \quad (1.10)$$

der Tensor der reziproken effektiven Masse. Die Näherung (1.9) ist die Effektivmassennäherung. Im Folgenden wird Isotropie der Bandstruktur vorausgesetzt, was die Rechnungen sehr vereinfacht, im allgemeinen jedoch keineswegs der Fall ist. Liegt in der Realität ein stark anisotropes System vor, so kann man dennoch, mit Hilfe geeignet gemittelter Bandmassen, ein isotropes Modell verwenden (s. Abschnitt 8.8). Dies führt zu den einfachen Formeln

$$\epsilon_{c\mathbf{k}} \simeq E_g + \frac{k^2}{2m_e}, \quad (1.11a)$$

$$\epsilon_{v\mathbf{k}} \simeq - \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_h} \quad (1.11b)$$

Die Bandenergien sind nun auf der Form der kinetischen Energie freier Teilchen; $m_e = m_c$ ist die effektive Masse eines Elektrons im Leitungsband, und $m_h = -m_v$ ist die effektive Masse eines Loches im Valenzband. Das Lochbild wird später (s. Glg. (1.18)) explizit eingeführt. Die Parameter E_g , m_e und m_h sind dem Experiment oder den Ergebnissen von Bandstrukturrechnungen zu entnehmen.

1.3 Die Blochdarstellung und die Wannierdarstellung

i) Der Hamiltonoperator in der Blochdarstellung

Seien $\Psi_s^+(\mathbf{r})$ und $\Psi_s(\mathbf{r})$ der Erzeugungs- und der Vernichtungsoperator eines Elektrons mit Spin s am Ort $\mathbf{r}$. Diese Feldoperatoren gehorchen den Vertauschungsrelationen für Fermi-Operatoren:

$$[\Psi_s(\mathbf{r}), \Psi_s^+(\mathbf{r}')]_{+} = \delta_{\mathbf{r}\mathbf{r}'} \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}'), \quad (1.12a)$$

$$[\Psi_s(\mathbf{r}), \Psi_{s'}(\mathbf{r}')]_{+} = [\Psi_s^+(\mathbf{r}), \Psi_{s'}^+(\mathbf{r}')]_{+} = 0. \quad (1.12b)$$

Darin ist $[\cdot, \cdot]_{\pm}$ der Kommutator definiert durch

$$[A, B]_{\pm} = AB \pm BA. \quad (1.13)$$

Das Plus-Zeichen in Gleichung (1.13) gilt für Fermi-Operatoren und das Minuszeichen für Bose-Operatoren. Nach den Regeln der Feldquantisierung [7, §13] ist für das Vielteilchensystem der Valenzelektronen im Potential $U(\mathbf{r})$ der Hamiltonoperator zu bilden gemäß

$$\hat{H}_0 = \sum_s \int dV \Psi_s^+(\mathbf{r}) H_0(\mathbf{r}) \Psi_s(\mathbf{r}) \quad (1.14)$$

mit dem Schrödingeroperator H_0 aus Gleichung (1.2). Es ist vorteilhaft, die Feldoperatoren nach den Eigenfunktionen des Hamiltonoperators H_0 , den Blochfunktionen $\phi_{\rho\mathbf{k}s}$, zu entwickeln:

$$\Psi_s(\mathbf{r}) = \sum_{\rho\mathbf{k}} a_{\rho\mathbf{k}s} \phi_{\rho\mathbf{k}s}(\mathbf{r}). \quad (1.15)$$

Die Operatoren $a_{\rho\mathbf{k}s}^+$ und $a_{\rho\mathbf{k}s}$ sind der Erzeugungs- und der Vernichtungsoperator eines Blochelektrons im Band ρ mit Impuls $\mathbf{k}$ und Spin s . Mit der Orthogonalitätsrelation (1.8) der Blochfunktionen folgen aus den Vertauschungsregeln (1.12) auch Fermivertauschungsrelationen für die Operatoren $a_{\rho\mathbf{k}s}^+$ und $a_{\rho\mathbf{k}s}$:

$$[a_{\rho\mathbf{k}s}, a_{\rho'\mathbf{k}'s'}^+]_+ = \delta_{\rho\rho'} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{ss'}, \quad (1.16a)$$

$$[a_{\rho\mathbf{k}s}, a_{\rho'\mathbf{k}'s'}]_+ = [a_{\rho\mathbf{k}s}^+, a_{\rho'\mathbf{k}'s'}^+]_+ = 0. \quad (1.16b)$$

Setzt man die Entwicklung (1.15) des Feldoperators in den Hamiltonoperator (1.14) ein, so erhält dieser mit Hilfe der Schrödingergleichung (1.1) der Blochfunktionen die einfache Gestalt

$$\hat{H}_0 = \sum_{\rho\mathbf{k}s} \epsilon_{\rho\mathbf{k}} a_{\rho\mathbf{k}s}^+ a_{\rho\mathbf{k}s}. \quad (1.17)$$

Die Größe $n_{\rho\mathbf{k}s} = a_{\rho\mathbf{k}s}^+ a_{\rho\mathbf{k}s}$ kann als der Operator der Besetzungszahl des Zustandes $|\rho\mathbf{k}s\rangle$ interpretiert werden. Damit ist ersichtlich, daß der Hamiltonoperator (1.17) die Energie des Elektronsystems abzählt.

In Gleichung (1.17) steht der Index $\rho=c,v$ für Elektronen des Leitungs- bzw. des Valenzbandes. Dies ist das sogenannte Teilchenbild. Oftmals ist aber das sogenannte Elektron-Loch-Bild anschaulicher. Diese Beschreibung macht davon Gebrauch, daß sich ein fehlendes Elektron im Valenzband, das 'Loch', ganz so verhält, wie ein positiv geladenes Teilchen mit der effektiven Masse $m_h = -m_v$. Es besteht eine Analogie zwischen dem gefüllten Valenzband und dem Dirac-See in der relativistischen Quantenmechanik. Dabei übernimmt das Loch die Rolle des Positrons [2, §65]. Die Transformation vom Teilchenbild in das Elektron-Loch-Bild ist gegeben durch [8, §11]

$$a_{c\mathbf{k}s} \rightarrow a_{c\mathbf{k}s}, \quad (1.18a)$$

$$a_{vks} \rightarrow (-1)^{s-1/2} a_{h,-k,-s}^+ \quad (1.18b)$$

Die Vernichtung eines Valenzbandelektrons mit Impuls k und Spin s ist also äquivalent zur Erzeugung eines Loches (h =‘hole’) mit Impuls $-k$ und Spin $-s$. Mit der Transformation (1.18) lautet der Hamiltonoperator (1.17)

$$\hat{H}_0 = \sum_{jks} \epsilon_{jk} a_{jks}^+ a_{jks} + \sum_{ks} \epsilon_{vk} \quad (1.19)$$

mit $j=e,h$ und $\epsilon_{ek}=\epsilon_{ck}$, $\epsilon_{hk}=-\epsilon_{v,-k}$.

Wie geschildert, beinhaltet der Hamiltonoperator (1.17) nur die Wechselwirkung der Valenzelektronen im Grundzustand des Kristalls. Greift nun ein externes Laserfeld an der Ladungsträgerdichte an, so werden Elektronen aus dem Valenzband in Zustände des Leitungsbandes versetzt. Diese Elektronen treten sowohl untereinander als auch mit den im Valenzband zurückgebliebenen Löchern in Wechselwirkung. Ferner koppeln sie an die Gitterschwingungen des Kristalls an. Diese Wechselwirkungen müssen in den nächsten Abschnitten mathematisch formuliert werden. Zuvor soll aber noch eine andere nützliche Darstellung des Feldoperators (1.15) und des Hamiltonoperators (1.17) angegeben werden.

ii) Der Hamiltonoperator in der Wannierdarstellung

Blochwellen beschreiben delokalisierte Teilchen, deren Aufenthaltswahrscheinlichkeit sich über den ganzen Kristall erstreckt. Gelegentlich, insbesondere bei der Beschreibung räumlich inhomogener Systeme, sind aber Funktionen geeignet, die lokalisierte Teilchen beschreiben. Besondere Bedeutung kommt den Wannierfunktionen [1, S. 163] zu, welche als Fouriertransformierte der Blochfunktionen auf dem Kristallgitter definiert sind. Bezeichnet man die Aufpunkte zu den Elementarzellen des Kristallgitters durch die Ortsvektoren $\mathbf{R}$, so ist die Wannierfunktion zum Gitterplatz $\mathbf{R}$ definiert als

$$w_{\rho s}(\mathbf{r}-\mathbf{R}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}} \phi_{\rho ks}(\mathbf{r}), \quad (1.20)$$

wobei N die Zahl der Gitterzellen ist. Diese Funktion beschreibt ein in der Gitterzelle $\mathbf{R}$ lokalisiertes Elektron [7, §19]. Mit Hilfe der Relation (1.8) der Blochfunktionen folgert man die Orthonormiertheit auch für die Wannierfunktionen:

$$\langle \rho \mathbf{R} s | \rho' \mathbf{R}' s' \rangle = \delta_{\rho \rho'} \delta_{\mathbf{R} \mathbf{R}'} \delta_{ss'}. \quad (1.21)$$

Die Wannierfunktionen (1.20) bilden allerdings keine stationären Zustände. Ein gemäß Gleichung (1.20) präpariertes Wellenpaket zerfließt mit der Zeit, und zwar umso schneller, je kleiner der Betrag der effektiven Bandmasse m_p ist (vgl. [2, §3]).

In Analogie zur Entwicklung (1.15) des Feldoperators können nun Fermioperatoren $a_{\rho\mathbf{R}s}^+$ und $a_{\rho\mathbf{R}s}$ als Erzeugungs und Vernichtungsoperatoren eines Elektrons in der Gitterzelle $\mathbf{R}$ eingeführt werden durch

$$\Psi_s(\mathbf{r}) = \sum_{\rho\mathbf{R}} a_{\rho\mathbf{R}s} w_{\rho s}(\mathbf{r}-\mathbf{R}). \quad (1.22)$$

Für die neuen Operatoren gelten die Vertauschungsrelationen

$$[a_{\rho\mathbf{R}s}, a_{\rho'\mathbf{R}'s'}^+]_+ = \delta_{\rho\rho'} \delta_{\mathbf{R}\mathbf{R}'} \delta_{ss'}, \quad (1.23a)$$

$$[a_{\rho\mathbf{R}s}, a_{\rho'\mathbf{R}'s'}]_+ = [a_{\rho\mathbf{R}s}^+, a_{\rho'\mathbf{R}'s'}^+]_+ = 0. \quad (1.23b)$$

Es ist aber günstiger, in geringfügiger Abänderung die Operatoren

$$\Psi_{\rho s}(\mathbf{R}) = V_0^{-1/2} a_{\rho\mathbf{R}s} \quad (1.24)$$

zu verwenden, wobei V_0 das Volumen einer Gitterzelle ist. Während nämlich der Operator $n_{\rho\mathbf{R}s} = a_{\rho\mathbf{R}s}^+ a_{\rho\mathbf{R}s}$ der Besetzungszahloperator der Elektronen am Ort $\mathbf{R}$ mit Spin s ist, ergibt die Größe $\rho_{\rho s}(\mathbf{R}) = \Psi_{\rho s}^+(\mathbf{R}) \Psi_{\rho s}(\mathbf{R})$ einen Dichteoperator. Die Operatoren $\Psi_{\rho s}(\mathbf{R})$, Glg. (1.24), können so, bei der Behandlung der Gitterplätze als Quasikontinuum, die Rolle von Feldoperatoren übernehmen. Anstelle von Gleichung (1.23a) gilt nun für die Vertauschungsrelation

$$[\Psi_{\rho s}(\mathbf{R}), \Psi_{\rho' s'}^+(\mathbf{R}')]_+ = \delta_{\rho\rho'} \frac{\delta_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}}{V_0} \delta_{ss'}. \quad (1.25)$$

Man überzeugt sich leicht, daß in der Kontinuumsapproximation

$$\sum_{\mathbf{R}} \rightarrow \frac{1}{V_0} \int dV \quad (1.26)$$

die Entsprechung

$$\frac{\delta_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}}{V_0} \hat{=} \delta(\mathbf{R}-\mathbf{R}') \quad (1.27)$$

gilt. Aus der Entwicklung (1.15) des Feldoperators und den Gleichungen (1.22) und (1.24) folgt mit der Definition (1.20) der Wannierfunktionen der Zusammenhang

$$\Psi_{\rho\mathbf{s}}(\mathbf{R}) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} a_{\rho\mathbf{k}\mathbf{s}}, \quad (1.28)$$

wobei $V=NV_0$ das Gesamtvolumen ist. Nun läßt sich der Hamiltonoperator (1.17) aus der Blochdarstellung in die Wannierdarstellung übertragen:

$$\hat{H}_0 = \sum_{\rho\mathbf{s}} \frac{1}{V} \int dV \int dV' \Psi_{\rho\mathbf{s}}^+(\mathbf{R}) \epsilon_{\rho}(\mathbf{R}-\mathbf{R}') \Psi_{\rho\mathbf{s}}(\mathbf{R}'). \quad (1.29)$$

Die Größe $\epsilon_{\rho}(\mathbf{R}-\mathbf{R}')$ ist die Fouriertransformierte der kinetischen Energie $\epsilon_{\rho\mathbf{k}}$,

$$\epsilon_{\rho}(\mathbf{R}-\mathbf{R}') = \sum_{\mathbf{k}} \epsilon_{\rho\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}-\mathbf{R}')}. \quad (1.30)$$

Der Hamiltonoperator $\hat{H}_0$ ist in der Ortsdarstellung (1.29) nichtdiagonal, da die Wannierfunktionen nichtstationär sind. Nur im Grenzfall flacher Energiebänder, also großer effektiver Massen, reduziert sich Gleichung (1.29) mit $\epsilon_{\rho\mathbf{k}} \rightarrow \epsilon_{\rho}$ zu

$$\hat{H}_0 \rightarrow \sum_{\rho\mathbf{R}\mathbf{s}} \epsilon_{\rho} a_{\rho\mathbf{R}\mathbf{s}}^+ a_{\rho\mathbf{R}\mathbf{s}}.$$

Das ist der Grenzfall nicht überlappenden atomarer bzw. molekularer Orbitale. Für endliche Bandmassen erhält man mit Hilfe von Gleichung (1.11) aus den Gleichungen (1.29) und (1.30) durch partielle Integration

$$\hat{H}_0 = \sum_{\rho s} \int dV \Psi_{\rho s}^+(\mathbf{R}) \epsilon_{\rho \mathbf{p}} \Psi_{\rho s}(\mathbf{R}) \quad (1.31)$$

mit dem Impulsoperator $\mathbf{p}=\nabla/i$. Damit ist der Hamiltonoperator $\hat{H}_0$ auf der Form eines Hamiltonoperators freier Teilchen, die die Massen m_ρ besitzen.

2. DIE WECHSELWIRKUNGSMECHANISMEN IN EINEM ANGEREGTEN HALBLEITER

Im vorangegangenen Kapitel wurden die Wechselwirkungen der Valenzelektronen und der Gitterionen im Grundzustand eines Halbleiters beschrieben. In diesem Kapitel sollen nun die Wechselwirkungsmechanismen im optisch angeregten Halbleiter diskutiert werden. Begonnen wird mit der Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander und ihrer Wechselwirkung mit den Gitterschwingungen. Anschließend wird der Anregungsmechanismus selbst, die Wechselwirkung der Elektronen mit dem Laserfeld, beschrieben.

2.1 Die Coulombwechselwirkung der Ladungsträger

Die Coulombwechselwirkung eines Systems von Elektronen wird nach den Regeln der Feldquantisierung [7, §13] beschrieben durch den Hamiltonoperator

$$H_w = \frac{1}{2} \int dV \int dV' \Psi_s^\dagger(\mathbf{r}) \Psi_s^\dagger(\mathbf{r}') V_0(|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|) \Psi_{s'}(\mathbf{r}') \Psi_s(\mathbf{r}), \quad (2.1)$$

wobei

$$V_0(r) = \frac{e^2}{r} \quad (2.2)$$

das elektrostatische Potential ist. Der Hamiltonoperator (2.1) soll in der Blochdarstellung und in der Wannierdarstellung betrachtet werden. Mit der Entwicklung (1.15) des Feldoperators $\Psi_s(\mathbf{r})$ nach Blochwellen wird der Operator H_w zu

$$H_w = \frac{1}{2} \sum_{i,j,k,l,q} a_i^\dagger a_j^\dagger W_{ijkl}(q) a_k a_l. \quad (2.3)$$

Hierbei wurde die Notation durch $l=(\rho_1, \mathbf{k}_1, s_1)$ etc. abgekürzt. Das Matricelement W ist gegeben durch

$$\begin{aligned} W_{1234}(\mathbf{q}) &= \delta_{s_1 s_4} \delta_{s_2 s_3} V_{0\mathbf{q}} M_{14}(\mathbf{q}) M_{23}(-\mathbf{q}) \\ &= W_{2143}(-\mathbf{q}). \end{aligned} \quad (2.4)$$

Darin ist $V_{0\mathbf{q}}$ die Fouriertransformierte des Coulombpotentials:

$$V_{0\mathbf{q}} = \frac{4\pi e^2}{Vq^2}. \quad (2.5)$$

Das Matricelement M ist gegeben durch

$$M_{12}(\mathbf{q}) = \int dV \phi_1^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \phi_2(\mathbf{r}). \quad (2.6)$$

Mit Hilfe des Blochschen Theorems, Glg. (1.4) und (1.5), folgert man die Impulserhaltung:

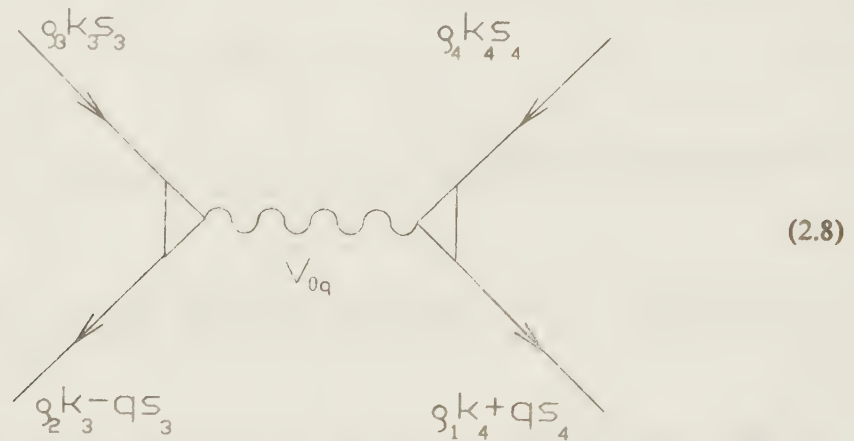
$$\begin{aligned} M_{12}(\mathbf{q}) &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{R}} M_{12}(\mathbf{q}) \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{R}} \int dV \phi_1^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \phi_2(\mathbf{r}) e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{q})\cdot\mathbf{R}} \\ &= M_{12}(\mathbf{q}) \sum_{\mathbf{G}} \delta_{\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{q}, \mathbf{G}}. \end{aligned} \quad (2.7a)$$

Die Vektoren $\mathbf{G}$ in der dritten Zeile von Gleichung (2.7a) sind die sogenannten reziproken Gittervektoren, die durch die Eigenschaft $\mathbf{G}\cdot\mathbf{R}=2\pi n$ definiert sind [3, S.65].

Streuvorgänge, die unter der Beteiligung endlicher $\mathbf{G}$ -Vektoren ablaufen, nennt man Umklapp-Prozesse [3, S.168]. Diese Streuprozesse spielen für Ladungsträger, die sich im Impulsraum in der Nähe des Γ -Punktes aufhalten, nur eine untergeordnete Rolle und sollen von nun an immer vernachlässigt werden. Dann reduziert sich Gleichung (2.7a) zu

$$M_{12}(\mathbf{q}) = M_{12}(\mathbf{q}) \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2 + \mathbf{q}}. \quad (2.7b)$$

Die durch den Operator (2.3) beschriebenen Streuprozesse sollen zur Veranschaulichung graphisch dargestellt werden. Unter Berücksichtigung der Spin- und Impulserhaltung ergibt sich folgendes Diagramm:



In dieser Form ist die Coulombwechselwirkung für praktische Berechnungen noch etwas kompliziert. Deshalb werden nun einige Näherungen vorgenommen. Eine Vereinfachung besteht darin, nur solche Prozesse explizit zu betrachten, bei denen die Zahl der Ladungsträger in den einzelnen Bändern erhalten bleibt. Die übrigen Prozesse sollen lediglich in Form einer dielektrischen Konstanten berücksichtigt werden. Das kann mit folgender Begründung geschehen:

Als Beispiel sei der durch das Matricelement W_{cccv} beschriebene Prozeß betrachtet. Hier wird ein Valenzbandelektron durch den Stoß mit einem Leitungsbandelektron ebenfalls in das Leitungsband versetzt. Die hierzu notwendige Energie ist mindestens die Energie E_g der Bandlücke. Das Leitungsbandelektron müßte demnach vor dem Stoß eine sehr große kinetische Energie besessen haben. Unter Anregungsbedingungen, unter denen sich die Elektronen und Löcher im Impulsraum in der Nähe des Γ -Punktes befinden, kommt dies aber praktisch nicht vor. Der soeben beschriebene Prozeß kann deshalb nicht unter Energieerhaltung stattfinden. Das bedeutet, daß das Valenzbandelektron nur kurzfristig im Leitungsband verbleiben kann und wieder in das Valenzband zurückkehren muß. In solchen Fällen spricht man von virtuellen Übergängen, im Gegensatz zu sogenannten realen Streuprozessen, bei denen Teilchen dauerhaft in einen anderen Zustand gestreut werden und bei denen die Energie erhalten bleibt. Das Begriffspaar 'reell-virtuell' (englisch: 'virtual' = beinahe, fast) ist etwas unglücklich gewählt, da der Begriff 'virtuell' keineswegs im Gegensatz zu 'real' steht. Die hier diskutierte virtuelle Interband-Coulombstreuung liefert einen Beitrag zur dielektrischen Polarisierbarkeit des Kristalls. Sie bestimmt zusammen mit der Polarisierbarkeit der Rumpionen und des Ionengitters

die longitudinale dielektrische Funktion des nicht angeregten Kristalls (s. Abschnitt 3.3). Während reelle Übergänge mit dem Auftreten von Resonanzen in der dielektrischen Funktion verbunden sind, liefern virtuelle Übergänge Beiträge zur dielektrischen Funktion, die nur schwach von der Frequenz abhängen. Die Beiträge der Rumpfbanden und der Interband-Coulombstreuung können deshalb mit einer frequenzunabhängigen dielektrischen Konstanten ϵ_∞ beschrieben werden. Diese Größe spielt die Rolle des hochfrequenten Grenzwertes der dielektrischen Funktion, der verbleibt, wenn die explizit behandelten Beiträge der Gitterschwingungen und der optisch erzeugten Ladungsträger verschwinden.

Man gelangt so zu den folgenden Vereinfachungen im Hamiltonoperator (2.3): von den sechzehn möglichen Bandindexkombinationen des Matrixelementes W , Glg. (2.4), werden nur die sechs Kombinationen $cccc$, $vvvv$, $cvvc$, $vccv$, $cvcv$ und $vcvc$ explizit beibehalten. Dafür muß das Coulombpotential V_0 , Glg. (2.2) bzw. (2.5), ersetzt werden durch das abgeschirmte Potential $V = V_0/\epsilon_\infty$,

$$V(r) = \frac{e^2}{\epsilon_\infty r}, \quad (2.9)$$

$$V_q = \frac{4\pi e^2}{V \epsilon_\infty q^2}. \quad (2.10)$$

Wie eine solche Ersetzung zustande kommt, wird in Abschnitt 3.3 am Beispiel der Abschirmung durch elastische Gitterschwingungen explizit gezeigt.

Die Kombinationen $cccc$ und $vvvv$ des Matrixelementes W beschreiben die Intraband-Coulombstreuung im Leitungsband und im Valenzband. Die Terme $cvvc$ ($vccv$) und $cvcv$ ($vcvc$) liefern im Elektron-Loch-Bild die Coulomb-Anziehung und die sogenannte Austauschwechselwirkung von Elektronen und Löchern. Noch zu subtrahieren ist der Anteil der Coulombwechselwirkung, der nach den Schilderungen des vorangegangenen Kapitels bereits in die Bandstruktur und in die Wellenfunktionen des Halbleitergrundzustandes eingegangen ist. Dies geschieht weiter unten, s. Glg. (2.15), automatisch durch Einführung des Elektron-Loch-Bildes.

Die relative Bedeutung der Coulombanziehung und der Austauschwechselwirkung von Elektronen und Löchern hängt vom Typ des Halbleiters ab. In Molekulkristallen spielt die Austauschwechselwirkung W_{cvcv} eine große Rolle. In diesen Materialien verbleiben die Ladungsträger aufgrund ihrer relativ großen effektiven Massen für vergleichsweise lange Zeiten an einzelnen Molekülen lokalisiert. Elektron-Loch-Paaranregungen bilden sich hier aus den Überlagerungen von individuellen Anregungen einzelner Moleküle. Solche Anregungen können sich bereits allein infolge der Austauschwechselwirkung W_{cvcv} im Kristall ausbreiten, wobei lediglich die Anregungen, jedoch keine Ladungsträger zwischen den Molekülen übertragen werden. Anregungszustände dieser Art nennt man Frenkel-Exzitonen [7, §24].

In Halbleitern, in denen die Ladungsträger relativ kleine effektive Massen besitzen, ist die Coulombanziehung W_{cvvc} zwischen Elektronen und Löchern besonders wichtig. Hier können sich aus den quasi freibeweglichen Elektronen und Löchern infolge der Coulombanziehung wasserstoffartige Paarzustände, sogenannte Wannier-Exzitonen, bilden. Dies ist der Fall, sofern die Größe

$$a_0 = \frac{\epsilon_0}{me^2}, \quad (2.11)$$

groß ist gegen die Gitterkonstante des Kristalls, wobei $\epsilon_0 = \epsilon(\omega=0)$ die statische dielektrische Konstante des nicht angeregten Halbleiters ist. Der Ausdruck (2.11) ist der Bohrsche Radius eines Wannier-Exzitons. In den in dieser Arbeit betrachteten Halbleitern ist der Typ der Wannier-Exzitonen realisiert. Für Galliumarsenid beispielsweise ist $\epsilon_0 \approx 12.35$, $m \approx 5.96 \cdot 10^{-2} m_0$, und demnach $a_0 \approx 1.09 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$, also etwa 20 Gitterkonstanten. Wannier-Exzitonen sind offenbar relativ große Gebilde. Man ist heute in der Lage, Halbleiterschichtstrukturen herzustellen, deren Schichtdicke den Bohr-Radius (2.11) von Wannier-Exzitonen unterschreitet. Hieraus ergeben sich neue interessante physikalische Phänomene [4].

Für Wannier-Exzitonen spielt die Austauschwechselwirkung W_{cvcv} nur eine untergeordnete Rolle. Dies kann man folgendermaßen erkennen: für quasi-freibewegliche Elektronen in der Nähe des Γ -Punktes läßt sich annehmen, daß die gitterperiodischen Funktionen $u_{\rho\mathbf{k}\mathbf{s}}(\mathbf{r})$ näherungsweise unabhängig vom Wellenvektor sind,

$$\phi_{\rho\mathbf{k}\mathbf{s}}(\mathbf{r}) \approx u_{\rho,\mathbf{k}=0,\mathbf{s}}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}. \quad (2.12)$$

Das Matrixelement M , Glg. (2.6), wird dann mit Gleichung (2.7) aufgrund der Orthogonalität der Blochfunktionen zu

$$\begin{aligned} M_{12}(\mathbf{q}) &= \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2 + \mathbf{q}} \int dV u_1^*(\mathbf{r}) u_2(\mathbf{r}) \\ &\approx \delta_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2 + \mathbf{q}} \delta_{ss'} \delta_{\rho\rho'}. \end{aligned} \quad (2.13)$$

In dieser Näherung verschwindet demnach die Austauschwechselwirkung von Elektronen und Löchern und soll hier deshalb vernachlässigt werden. Unter Berücksichtigung der besprochenen Näherungen lautet der Hamiltonoperator (2.3) nun

$$H_w = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'\mathbf{q}\rho\rho'\mathbf{s}\mathbf{s}'} a_{\rho,\mathbf{k}+\mathbf{q},\mathbf{s}}^+ a_{\rho',\mathbf{k}'-\mathbf{q},\mathbf{s}'}^+ V_{\mathbf{q}} a_{\rho',\mathbf{k}',\mathbf{s}'} a_{\rho,\mathbf{k},\mathbf{s}}. \quad (2.14)$$

Dieser Operator soll nun noch gemäß Gleichung (1.18) in das Elektron-Loch-Bild übertragen werden. Dabei werden wieder die Valenzbandoperatoren in Lochoperatoren

umdefiniert und anschließend die Normalordnung der Operatoren wiederhergestellt. Das Ergebnis ist

$$\begin{aligned}
 H_w = & \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'\mathbf{q}\mathbf{j}\mathbf{s}\mathbf{s}'} a_{\mathbf{j},\mathbf{k}+\mathbf{q},\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{j},\mathbf{k}'-\mathbf{q},\mathbf{s}'}^+ V_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{j}\mathbf{k}'\mathbf{s}'} a_{\mathbf{j}\mathbf{k}\mathbf{s}} \\
 & - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'\mathbf{q}\mathbf{s}\mathbf{s}'} a_{\mathbf{e},\mathbf{k}+\mathbf{q},\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{h},\mathbf{k}'-\mathbf{q},\mathbf{s}'}^+ V_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{h}\mathbf{k}'\mathbf{s}'} a_{\mathbf{e}\mathbf{k}\mathbf{s}} + H'_0.
 \end{aligned} \quad (2.15)$$

mit $\mathbf{j}=\mathbf{e},\mathbf{h}$. Die erste Zeile in Gleichung (2.15) beschreibt die abstoßende Wechselwirkung gleichartiger Teilchen und die zweite Zeile die Anziehung zwischen Elektronen und Löchern. Im Operator H'_0 wurden alle Energien zusammengefaßt, die bereits im Hamiltonoperator (1.17) Berücksichtigung fanden und daher nun aus Gleichung (2.15) zu streichen sind:

$$\begin{aligned}
 H'_0 = & \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'\mathbf{q}\mathbf{s}\mathbf{s}'} V_{\mathbf{q}} (\delta_{\mathbf{q},0} - \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{\mathbf{s}\mathbf{s}'}) \\
 & + \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'\mathbf{q}\mathbf{s}\mathbf{s}'} V_{\mathbf{q}} \delta_{\mathbf{q},0} a_{\mathbf{e}\mathbf{k}\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{e}\mathbf{k}\mathbf{s}} \\
 & - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'\mathbf{q}\mathbf{s}\mathbf{s}'} V_{\mathbf{q}} (\delta_{\mathbf{q},0} - \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{\mathbf{s}\mathbf{s}'}) a_{\mathbf{h}\mathbf{k}\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{h}\mathbf{k}\mathbf{s}}.
 \end{aligned} \quad (2.16)$$

Die einzelnen Beiträge in Gleichung (2.16) sind die Coulombenergie des vollen Valenzbandes, die Wechselwirkung der Elektronen mit dem gefüllten Valenzband und die Hartree-Fock-Wechselwirkung der Löcher mit dem vollen Valenzband. Es handelt sich hier einfach um starre Verschiebungen der Einteilchenenergien $\epsilon_{\rho\mathbf{k}}$. Die in Gleichung (2.16) auftretenden $\mathbf{q}=0$ -Divergenzen werden kompensiert durch die Wechselwirkungsenergie der Elektronen mit dem positiven Ionenhintergrund [8, §7].

Zum Abschluß dieses Abschnitts soll der Hamiltonoperator (2.15) noch in die Wannierdarstellung übertragen werden. Mit Hilfe der Entwicklung (1.28) erhält man in

der Kontinuumsapproximation (ohne den Beitrag H_0')

$$H_w = \frac{1}{2} \sum_{jss'} \int dV \int dV' \Psi_{js}^+(\mathbf{R}) \Psi_{js'}^+(\mathbf{R}') V(|\mathbf{R}-\mathbf{R}'|) \Psi_{js'}(\mathbf{R}') \Psi_{js}(\mathbf{R}) \quad (2.17)$$

$$- \sum_{ss'} \int dV \int dV' \Psi_{es}^+(\mathbf{R}) \Psi_{hs}^+(\mathbf{R}') V(|\mathbf{R}-\mathbf{R}'|) \Psi_{hs'}(\mathbf{R}') \Psi_{es}(\mathbf{R}).$$

Dieser Operator ist formal identisch mit dem Wechselwirkungsoperator der Protonen und Elektronen eines Wasserstoffplasmas.

2.2 Die Gitterschwingungen des Kristalls

Bisher wurden die Ionen des Kristallgitters als eine starre, periodische Anordnung betrachtet. Tatsächlich vollführen die Gitterbausteine gekoppelte Schwingungen um ihre Gleichgewichtslagen. Ferner sind die Ionen auch zu einem gewissen Grad in sich deformierbar. Die Auslenkungen des Gitters und die Deformationen der Ionen wiederum bewirken zusätzliche Potentiale, die auf die Elektronen und Löcher wirken. Zur Behandlung dieses Problems geht man in mehreren Stufen vor. Zunächst studiert man die Eigenschwingungen des Kristallgitters separat. Dazu stellt man sich in diesem Fall die Dichte der Ladungsträger als homogen verteilten Hintergrund vor (inverses Jellium-Modell). Nach den Regeln der Quantenmechanik ist eine Feldquantisierung nach den Eigenschwingungen des Kristallgitters durchzuführen [7, §10]. Dadurch gelangt man zu den Quanten der Gitterschwingungen, den Phononen. Anschließend formuliert man die Wechselwirkung der Phononen mit den Ladungsträgern.

Im Folgenden soll von der Deformierbarkeit der Gitterionen abgesehen werden. Sei r die Zahl der Basisatome in einer Elementarzelle. Jedes dieser Atome kann in drei unabhängigen Raumrichtungen schwingen. Das ergibt mit der Zahl N der Elementarzellen im Quantisierungsvolumen $3rN$ Bewegungsfreiheitsgrade. Auch wenn alle Kräfte, die zwischen den Basisatomen wirken, genau bekannt wären, ließe sich das zugehörige System von Bewegungsgleichungen im allgemeinen nicht exakt lösen. Man behandelt das Problem deshalb zunächst in der harmonischen Näherung kleiner Auslenkungen. Dabei wird die Wechselwirkungsenergie des Ionengitters bis zur zweiten Ordnung in den Auslenkungen der Basisatome aus ihren Gleichgewichtslagen entwickelt. Der erste Term dieser Entwicklung ist die konstante Wechselwirkungsenergie des starren Gitters. Der zweite Term der Entwicklung, der linear in den Auslenkungen ist, verschwindet, da die Entwicklung um die Gleichgewichtslagen ausgeführt wird. In zweiter Ordnung in den

Auslenkungen erhält man ein System von Bewegungsgleichungen gekoppelter harmonischer Oszillatoren. Aus diesem Gleichungssystem entsteht mit Hilfe eines harmonischen Ansatzes eine quadratische Form, die sich im Prinzip exakt diagonalisieren läßt. Die Lösungen sind kollektive, wellenförmige Schwingungsmoden. Zu jedem der N möglichen Wellenvektoren $\mathbf{q}$ existieren $3r$ verschiedene Schwingungszustände mit den zugehörigen Frequenzen $\omega_{\alpha\mathbf{q}}$, $\alpha=1,\dots,r$. Die Beziehung zwischen den Wellenvektoren $\mathbf{q}$ und den Frequenzen $\omega_{\alpha\mathbf{q}}$ nennt man Dispersionsrelation. Ähnlich wie die Energiebänder der Blochelektronen bilden die Frequenzen $\omega_{\alpha\mathbf{q}}$ als Funktion des Wellenvektors $\mathbf{q}$ Bänder, die man hier die Zweige der Dispersionsrelation nennt. Die Zweige $\omega_{\alpha\mathbf{q}}$ besitzen dieselben Symmetrieeigenschaften wie die Bandstruktur des Kristalls. Man kann verschiedene Schwingungstypen des Kristallgitters unterscheiden:

i) akustische Gitterschwingungen:

Der einfachste Fall liegt vor, wenn alle Basisatome einer Elementarzelle miteinander in Phase schwingen. In diesem Fall spricht man von einer akustischen Welle. Liegt die Schwingungsamplitude der Atome in der Richtung des Wellenvektors $\mathbf{q}$, also in Ausbreitungsrichtung der Welle, so nennt man die Schwingung longitudinal, bei senkrechter Polarisation dagegen heißt sie transversal. Im Allgemeinen sind Gitterschwingungen allerdings nicht streng longitudinal oder transversal. Jedenfalls gibt es entsprechend der drei unabhängigen Raumrichtungen drei verschiedene akustische Zweige. Im Grenzfall großer Wellenlänge benötigt man verschwindend wenig Energie, um eine akustische Mode anzuregen. Daher verschwinden für $q \rightarrow 0$ die Dispersionsrelationen der akustischen Äste, und zwar linear mit q . In einem isotropen System ist

$$\omega_{\alpha\mathbf{q}} = v_{\alpha} q \quad (2.18)$$

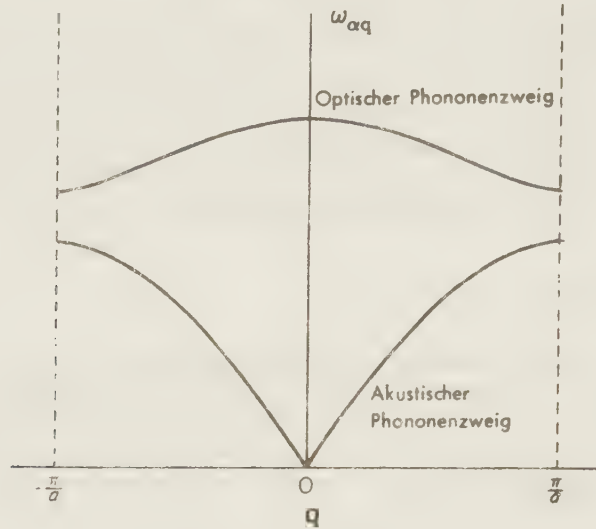
$$\text{für } q \rightarrow 0.$$

Der Koeffizient v_{α} ist die Schallgeschwindigkeit in der Schwingungsmode α . Die Entartung der akustischen Zweige für $q \rightarrow 0$ ist für endliche q -Werte im allgemeinen aufgehoben.

ii) optische Gitterschwingungen:

Schwingen die Basisatome einer Gitterzelle teilweise in Gegenphase, so spricht man von optischen Schwingungen. Es existieren $3(r-1)$ optische Zweige. Auch bei optischen Schwingungen unterscheidet man longitudinale und transversale Moden. Aufgrund der mit einer gegenphasigen Schwingung von Ionen verbundenen Ladungsverschiebungen entstehen hier starke innere Polarisationsfelder. Transversale optische Gitterschwingungen lassen sich deshalb leicht mit Hilfe elektromagnetischer Felder anregen. Elektronen und Löcher koppeln stark an die Polarisationsfelder, die von longitudinalen optischen Gitterschwingungen herrühren (s. Abschnitt 2.3). Charakteristisch für optische Zweige ist, daß die Schwingungsfrequenz $\omega_{\alpha\mathbf{q}}$ im langwelligen Grenzfall $q \rightarrow 0$ gegen einen endlichen Wert strebt, da auch langwellige optische Schwingungen mit Polarisationsfeldern

verbunden sind. Für endliche q -Werte beobachtet man bei optischen Zweigen in der Regel nur eine verhältnismäßig schwache Dispersion. Figur 2.1 zeigt schematisch den Verlauf eines optischen und eines akustischen Zweiges.



Figur 2.1. Vereinfachte Darstellung eines optischen und eines akustischen Phononenzweiges.

Jede Gitterschwingung kann als eine Linearkombination der soeben beschriebenen Eigenschwingungen des Gitters dargestellt werden. Die Koeffizienten dieser Entwicklung nennt man Normalkoordinaten. Die Hamiltonfunktion ausgedrückt durch diese Normalkoordinaten beschreibt $3rN$ ungekoppelte harmonische Oszillatoren. Im Rahmen der Quantenmechanik sind die Normalkoordinaten als Operatoren aufzufassen, für die die kanonischen Vertauschungsrelationen zu fordern sind. Schließlich gelangt man, wie beim gewöhnlichen harmonischen Oszillator, durch Kombination der Operatoren der Normalkoordinaten zu den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren einzelner Gitterschwingungen [1, §31]. Die Quanten der Eigenschwingungen des Kristallgitters heißen Phononen.

Seien $B_{\alpha q}^+$ und $B_{\alpha q}$ der Erzeugungs und der Vernichtungsoperator eines Phonons des Zweiges α mit dem Wellenvektor q . Da es sich bei den Phononen um die Quanten von harmonischen Oszillatoren handelt, genügen die Operatoren $B_{\alpha q}^+$ und $B_{\alpha q}$ den Vertauschungsrelationen für Bosonen:

$$[B_{\alpha q}, B_{\alpha' q'}^+]_- = \delta_{\alpha\alpha'} \delta_{qq'} \quad (2.19a)$$

$$[B_{\alpha q}, B_{\alpha' q'}]_- = [B_{\alpha q}^+, B_{\alpha' q'}^+]_- = 0. \quad (2.19b)$$

Der Hamiltonoperator wechselwirkungsfreier Phononen lautet

$$H_{0,\text{Ph}} = \sum_{\alpha\mathbf{q}} \omega_{\alpha\mathbf{q}} \left(B_{\alpha\mathbf{q}}^+ B_{\alpha\mathbf{q}} + \frac{1}{2} \right). \quad (2.20)$$

Der Operator $n_{\alpha\mathbf{q}} = B_{\alpha\mathbf{q}}^+ B_{\alpha\mathbf{q}}$ zählt die Quanten, mit denen die Schwingungsmode $|\alpha\mathbf{q}\rangle$ besetzt ist. Der Term $\propto 1/2$ in Gleichung (2.20) liefert die Nullpunktsenergie des Gitters. Dieser Term rührt daher, daß sich die Atome aufgrund der Heisenbergschen Unschärferelation niemals völlig in Ruhe befinden. Selbst am absoluten Nullpunkt der Temperatur verbleibt eine gewisse Bewegungsenergie im Gitter.

Der Hamiltonoperator (2.20) beschreibt die Gitterschwingungen in der harmonischen Näherung kleiner Auslenkungen. Über diese Näherung wird in dieser Arbeit nicht hinausgegangen. Im Falle stärkerer Anregung des Kristallgitters müssen störungstheoretisch anharmonische Korrekturen der Wechselwirkungsenergie der Ionen berücksichtigt werden. Diese führen im Bosonenbild, Glg. (2.19), (2.20), zu einer effektiven Phonon-Phonon-Wechselwirkung [1, Kap. XI].

2.3 Die Wechselwirkung der Ladungsträger mit den Gitterschwingungen

Die Kopplungsmechanismen zwischen den Ladungsträgern und den Auslenkungen des Ionengitters sind vielfältig [9, §1.3]. Hier soll lediglich ein einfaches Modell in sich starrer Ionen betrachtet werden. Sei $U_0(\mathbf{r})$ die potentielle Energie eines Elektrons im Ionengitter. $U_0(\mathbf{r})$ läßt sich schreiben als die Summe der Potentiale $U_{0\sigma}$, die von den einzelnen Basisatomen herrühren:

$$U_0(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{R}\sigma} U_{0\sigma}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_\sigma(\mathbf{R}) - \mathbf{R}). \quad (2.21)$$

Hierin bezeichnet der Ortsvektor $\mathbf{R}$ wie bisher den Aufpunkt zu einer Elementarzelle, und $\mathbf{r}_\sigma(\mathbf{R})$ ist der Verbindungsvektor zwischen dem Aufpunkt $\mathbf{R}$ und dem Basisatom mit dem Index σ . Der Vektor $\mathbf{r}_\sigma(\mathbf{R})$ sei zerlegt in $\mathbf{r}_\sigma(\mathbf{R}) = \mathbf{r}_{0\sigma} + \mathbf{s}_\sigma(\mathbf{R})$, wobei $\mathbf{r}_{0\sigma}$ die Gleichgewichtslage des Atoms und $\mathbf{s}_\sigma(\mathbf{R})$ seine Auslenkung bezeichnen. Für kleine Auslenkungen $\mathbf{s}_\sigma(\mathbf{R})$ kann das Potential (2.21) um die Gleichgewichtslagen entwickelt werden:

$$U_0(\mathbf{r}) \simeq \sum_{\mathbf{R}\sigma} [U_{0\sigma}(\mathbf{r}-\mathbf{r}_{0\sigma}-\mathbf{R}) + \mathbf{s}_\sigma(\mathbf{R}) \cdot \nabla_{\mathbf{R}} U_{0\sigma}(\mathbf{r}-\mathbf{r}_{0\sigma}-\mathbf{R})]. \quad (2.22)$$

Der erste Term in Gleichung (2.22), der das Potential des starren Gitters darstellt, ist bereits im Hamiltonoperator (1.14) berücksichtigt. Der zweite Term in Gleichung (2.22) liefert den Hamiltonoperator, der die Wechselwirkung zwischen den Elektronen und den Phononen beschreibt:

$$H_{\text{El-Ph}} = \sum_{\mathbf{s}} \int dV \Psi_{\mathbf{s}}^+(\mathbf{r}) \sum_{\mathbf{R}\sigma} (-\nabla_{\mathbf{R}} \cdot \mathbf{s}_\sigma(\mathbf{R})) U_{0\sigma}(\mathbf{r}-\mathbf{r}_{0\sigma}-\mathbf{R}) \Psi_{\mathbf{s}}(\mathbf{r}). \quad (2.23)$$

Dabei wurde im Potential (2.22) eine partielle Integration vorgenommen. Der Operator $\mathbf{s}_\sigma(\mathbf{r})$ der Auslenkung des Atoms σ in der Gitterzelle $\mathbf{R}$ hängt mit den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren der Phononen $B_{\alpha\mathbf{q}}^+$, $B_{\alpha\mathbf{q}}$ zusammen gemäß [2, Glg. (82.16)]

$$\mathbf{s}_\sigma(\mathbf{R}) = \frac{1}{\sqrt{NM_\sigma}} \sum_{\alpha\mathbf{q}} \frac{1}{\sqrt{2\omega_{\alpha\mathbf{q}}}} (B_{\alpha\mathbf{q}} + B_{\alpha,-\mathbf{q}}^+) \mathbf{e}_{\alpha\sigma\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}}. \quad (2.24)$$

In dieser Gleichung ist M_σ die Masse des Atoms σ und $\mathbf{e}_{\alpha\sigma\mathbf{q}}$ ist der Einheitsvektor, der die Schwingungsrichtung des Atoms σ in der Mode $|\alpha\mathbf{q}\rangle$ angibt. Mit Gleichung (2.24), der Entwicklung (1.15) der Feldoperatoren nach Blochfunktionen und mit Hilfe des Blochschen Theorems, Glg. (1.4) und (1.5), wird der Hamiltonoperator (2.23) zu

$$H_{\text{El-Ph}} = - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{q}\rho\rho'\alpha\mathbf{s}} \mathbf{a}_{\rho,\mathbf{k}+\mathbf{q},\mathbf{s}}^\dagger \mathbf{a}_{\rho',\mathbf{k},\mathbf{s}} (B_{\alpha\mathbf{q}} + B_{\alpha,-\mathbf{q}}^+) \mathbf{g}_{\mathbf{k}\mathbf{q}\rho\rho'\alpha\mathbf{s}}. \quad (2.25)$$

Dieser Operator beschreibt die Streuung eines Blochelektrons aus dem Zustand $|\rho'\mathbf{k}\mathbf{s}\rangle$ in den Zustand $|\rho,\mathbf{k}+\mathbf{q},\mathbf{s}\rangle$ unter Absorption eines Phonons mit dem Impuls $\mathbf{q}$ oder unter Emission eines Phonons mit dem Impuls $-\mathbf{q}$. Diese Prozesse lassen sich durch das Diagramm



veranschaulichen. Das Matrixelement g ist gegeben durch

$$g_{\mathbf{k}q\rho\rho'\alpha s} = \sum_{\sigma} \frac{1}{\sqrt{2NM_{\sigma}\omega_{\alpha q}}} i\mathbf{q} \cdot \mathbf{e}_{\alpha\sigma q} f_{\mathbf{k}q\rho\rho'\sigma s} \quad (2.27)$$

mit

$$f_{\mathbf{k}q\rho\rho'\sigma s} = N \int dV u_{\rho, \mathbf{k}+\mathbf{q}, s}^*(\mathbf{r}) U_{0\sigma}(\mathbf{r}-\mathbf{r}_{0\sigma}) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} u_{\rho', \mathbf{k} s}(\mathbf{r}). \quad (2.28)$$

Zur Vereinfachung läßt sich zunächst die Näherung (2.12) verwenden. In dieser Näherung hängt die Größe f , Glg. (2.28), nicht vom Wellenvektor $\mathbf{k}$ ab. Es kann auch angenommen werden, daß f unabhängig vom Spin ist. Ferner sollen keine Interbandprozesse ($\rho \neq \rho'$) aufgrund von Phononen betrachtet werden. Hier kann ähnlich argumentiert werden wie in Abschnitt 2.1 zur Interband-Coulombstreuung: da die Energien der Schwingungsquanten typischerweise viel kleiner sind als die Energielücke E_g , können solche Prozesse nur virtuell stattfinden. Der Anschaulichkeit halber sei noch angenommen, daß alle Schwingungsmoden streng longitudinal oder streng transversal sind, was allerdings nur für die kubische Kristallstruktur exakt zutrifft. Gleichung (2.27) zeigt, daß in diesem Fall nur longitudinale Phononen an die Ladungsträger ankoppeln.

Bei einer optischen Schwingung in einer binären Verbindung wie Galliumarsenid sind die Schwingungsvektoren der positiven und der negativen Ionen antiparallel. Da auch die Vorzeichen der Potentiale $U_{0\sigma}$ der negativen und der positiven Ionen entgegengesetzt sind, kommt es in diesem Fall in Gleichung (2.27) zu einer Addition der Beträge. Bei der akustischen Schwingung dagegen, bei der positive und negative Ionen gleichsinnig schwingen, kommt es zu einer Kompensation der Beträge. Dies läßt erkennen, daß die Kopplung der Elektronen an die LO-Phononen erheblich stärker ist als ihre Kopplung an die LA-Phononen. Im Folgenden werden deshalb nur noch die LO-Phononen ($\alpha=L$) berücksichtigt. In guter Näherung kann sogar die Dispersion dieser Mode vernachlässigt werden, also $\omega_{Lq} \simeq \omega_L$ gesetzt werden. Der vereinfachte Hamiltonoperator lautet dann

$$H_{\text{El-Ph}} = - \sum_{\rho \mathbf{k} \mathbf{q} s} a_{\rho, \mathbf{k}+\mathbf{q}, s}^+ a_{\rho \mathbf{k} s} (B_{\mathbf{q}} + B_{-\mathbf{q}}^+) g_{\rho \mathbf{q}} \quad (2.29)$$

mit dem Matrixelement

$$g_{\rho q} = \sum_{\sigma} \frac{1}{\sqrt{2NM_{\sigma}\omega_L}} i\mathbf{q} \cdot \mathbf{e}_{\sigma q} f_{q\rho\sigma}. \quad (2.30)$$

Die Herleitung des Hamiltonoperators (2.29) und insbesondere des Matrixelementes (2.30) ist von Wert für das Verständnis der Wechselwirkungsmechanismen. Zur praktischen Bestimmung des Matrixelementes $g_{\rho q}$ ist Gleichung (2.30) aber nicht geeignet, da hierzu eine genaue Kenntnis der mikroskopischen Potentiale erforderlich ist. Eine einfachere Bestimmung des Matrixelementes ergibt sich später in Abschnitt 3.3 bei der Diskussion der abschirmenden Wirkung der LO-Phononen. Das Matrixelement $g_{\rho q}$ wird dort in Beziehung gesetzt zur statischen dielektrischen Konstanten ϵ_0 des Kristalls. Diese Größe ist experimentell gut zugänglich, und geht als weiterer Materialparameter in die Theorie ein.

Am Ende dieses Abschnittes soll wieder eine Ortsraumformulierung des Wechselwirkungshamiltonoperators angegeben werden. Im Hinblick auf den Abschnitt 3.3 der Abschirmung durch optische Phononen ist es nützlich, die Polarisationsfelder, die durch die Ionenverschiebungen hervorgerufen werden, als die Felder von Verschiebungsladungen aufzufassen. Der Hamiltonoperator (2.29) kann dann, in Analogie zum Operator (2.17) der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger, geschrieben werden als die Wechselwirkungsenergie der Ladungsdichte der Elektronen mit der Dichte $\delta\rho_{\text{Ion}}$ der Verschiebungsladungen:

$$H_{\text{El-Ph}} = \int dV \int dV' \rho_{\text{El}}(\mathbf{R}) V(|\mathbf{R}-\mathbf{R}'|) \delta\rho_{\text{Ion}}(\mathbf{R}'). \quad (2.31)$$

Hierin ist

$$\rho_{\text{El}}(\mathbf{R}) = \sum_{\rho s} \Psi_{\rho s}^+(\mathbf{R}) \Psi_{\rho s}(\mathbf{R}) \quad (2.32)$$

der Dichteoperator der Elektronen. Durch Vergleich der beiden Ausdrücke (2.29) und (2.31) für den Hamiltonoperator $H_{\text{El-Ph}}$ erhält man nach Fouriertransformation folgenden Ausdruck für den Operator $\delta\rho_{\text{Ion}}$ der Verschiebungsladungen:

$$\delta\rho_{\text{Ion}}(\mathbf{q}) = - \frac{g_{\mathbf{q}}}{V V_{\mathbf{q}}} (\mathbf{B}_{\mathbf{q}} + \mathbf{B}_{-\mathbf{q}}^+). \quad (2.33)$$

Um zu dieser Definition zu gelangen, war es noch notwendig, das Matricelement g als unabhängig vom Bandindex ρ anzunehmen. Eine vollständige Vereinheitlichung der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger und der Phononen kann man nun durch einen Schritt erreichen, der von Zimmermann [10, §3.3] formuliert wurde: man definiert die Gesamtdichte $\rho(\mathbf{R})$ der freien Ladungen und der Verschiebungsladungen durch

$$\rho(\mathbf{R}) = \rho_{\text{El}}(\mathbf{R}) + \delta\rho_{\text{Ion}}(\mathbf{R}). \quad (2.34)$$

Betrachtet man jetzt den Gesamthamiltonoperator der Coulombwechselwirkung

$$\frac{1}{2} \int dV \int dV' \rho(\mathbf{R}) V(|\mathbf{R}-\mathbf{R}'|) \rho(\mathbf{R}'), \quad (2.35)$$

so sieht man, daß in diesem Ausdruck neben den Operatoren (2.17) und (2.31) der Elektron-Elektron- und der Elektron-Phonon-Wechselwirkung auch eine longitudinale Ion-Ion-Wechselwirkung $\propto \delta\rho_{\text{Ion}}\delta\rho_{\text{Ion}}$ enthalten ist, die bisher nicht explizit aufgetreten war. Zimmermanns Analyse macht deutlich, daß diese zusätzliche Wechselwirkung in der bisherigen Formulierung im Operator $H_{0,\text{Ph}}$, Glg. (2.20), enthalten ist und dort die longitudinal-transversal-Aufspaltung $\omega_L - \omega_T$ verursacht. Es ist einleuchtend, daß in der longitudinalen Schwingung der Ionen eine zusätzliche Coulombenergie gegenüber der transversalen Mode steckt. In einer Formulierung der Theorie mit dem Operator (2.35) muß demnach im Operator $H_{0,\text{Ph}}$, Glg. (2.20), die Frequenz ω_L durch die Frequenz ω_T ersetzt werden. Hierdurch erklärt sich das überraschende Auftreten der Frequenz ω_T der transversal-optischen Phononen in der longitudinalen dielektrischen Funktion (s. Glg. (3.18)), die dort eingeht, obwohl transversale Phononen gar nicht an den Abschirmungsprozessen beteiligt sind.

2.4 Die Wechselwirkung der Ladungsträger mit dem Lichtfeld

Der Hamiltonoperator, der die Wechselwirkung der Ladungsträger mit dem elektromagnetischen Feld beschreibt, ist gegeben durch [7, §44]

$$\hat{H}_{\mathbf{A}} = \sum_s \int dV \Psi_s^\dagger(\mathbf{r}) H_{\mathbf{A}}(\mathbf{r}) \Psi_s(\mathbf{r}) \quad (2.36)$$

mit dem Schrödinger-Operator

$$H_A = \frac{e\mathbf{A}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{p}}{m_0 c} + \frac{e^2 A^2(\mathbf{r})}{2m_0 c^2}. \quad (2.37)$$

Hierin ist $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ das transversale Vektorpotential, das wie $\Psi_s(\mathbf{r})$ ein Feldoperator ist. Die Quanten des elektromagnetischen Feldes, die Photonen, genügen der Boson-Statistik. Deshalb gelten für das Vektorpotential und den zugehörigen kanonisch konjugierten Impuls Vertauschungsrelationen mit einem Minus-Kommutator $[\cdot, \cdot]_-$. Die genaue Form der Vertauschungsrelationen für das Vektorpotential hängt von der Eichung des elektromagnetischen Feldes ab [7, §11]. Die Feldquantisierung soll an dieser Stelle aber gar nicht durchgeführt werden. Das Interesse gilt in dieser Arbeit der Wirkung von intensiven kohärenten Laserfeldern, für die Quanteneffekte vernachlässigbar sind. Im Folgenden wird also das Vektorpotential als klassische Größe aufgefaßt, d.h. der Vektoroperator $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ wird als gewöhnliche Vektorfunktion $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ behandelt. Durch die explizite Zeitabhängigkeit des Laserfeldes $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ wird auch der Hamiltonoperator (2.36) explizit zeitabhängig.

Durch Einsetzen der Entwicklung (1.22), (1.24) des Elektron-Feldoperators nach Wannierfunktionen in den Hamiltonoperator (2.36) erhält man

$$\hat{H}_A(t) = V_0 \sum_{\mathbf{R}\mathbf{R}'\rho\rho's} \Psi_{\rho s}^*(\mathbf{R}) \Psi_{\rho's}(\mathbf{R}') \int dV w_{\rho s}^*(\mathbf{r}-\mathbf{R}) H_A(\mathbf{r}, t) w_{\rho's}(\mathbf{r}-\mathbf{R}'). \quad (2.38)$$

Eine gewisse Vereinfachung des Hamiltonoperators (2.38) ergibt sich in der sogenannten Dipol-Eichung. Man nutzt aus, daß die wesentlichen Beiträge zu dem Integral in Gleichung (2.38) aus dem Überlappgebiet der Wannierfunktionen stammen, welches sich kaum weiter als über einige Gitterkonstanten erstreckt (s. Glg. (2.67)). Über eine solche Länge ($\approx 10^{-7}$ cm) ist das elektromagnetische Feld im Bereich optischer Wellenlängen ($\approx 10^{-5}$ cm) nahezu konstant, so daß das Vektorpotential $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ in Gleichung (2.38) näherungsweise durch seinen Wert an einem Punkt in der Nähe der beiden Gitterplätze $\mathbf{R}$ und $\mathbf{R}'$ ersetzt werden kann. Hierfür kann der geometrische Schwerpunkt $(\mathbf{R} + \mathbf{R}')/2$ gewählt werden. In diesem Grenzfall großer Wellenlänge ist eine unitäre Transformation des Hamiltonoperators (bzw. Eichung des elektromagnetischen Feldes) möglich, durch welche der Schrödinger-Operator in Gleichung (2.38) übergeht in den Ausdruck

$$- e (\mathbf{r}-\mathbf{R}'') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}'', t) \quad (2.39)$$

mit

$$\mathbf{R}'' = (\mathbf{R} + \mathbf{R}')/2 \quad (2.40)$$

[11, App. B]. Der Ausdruck (2.39) beschreibt die Wechselwirkungsenergie eines Dipols im elektrischen Feld E . Der Hamiltonoperator der Wechselwirkung der Elektronen mit dem transversalen elektromagnetischen Feld erhält hier also die Form der Wechselwirkung mit einem longitudinalen elektrischen Feld. Eine solche Transformation ist möglich, da sich im langwelligen Grenzfall der Unterschied zwischen einem longitudinalen und einem transversalen Feld verliert [12, Glg. (2.36)]. Die Form (2.39) der Wechselwirkung ist günstig, da sie auch den Term $\propto A^2$ aus dem Operator (2.37) berücksichtigt, der sonst häufig vernachlässigt wird. Mit dieser Transformation geht der Hamiltonoperator (2.38) über in

$$H_E(t) = - \sum_{\rho\rho's} \frac{1}{V} \int dV \int dV' \Psi_{\rho s}^+(R) \mu_{\rho\rho's}(R-R') \cdot E((R+R')/2, t) \Psi_{\rho's}(R'). \quad (2.41)$$

Hierbei wurde das nichtlokale Dipolmatrixelement μ [11, Glg. (B.14)] definiert durch

$$\mu_{\rho\rho's}(R-R') = eN \int dV w_{\rho s}^*(r-R) (r-(R+R')/2) w_{\rho's}(r-R') \quad (2.42a)$$

$$= eN \int dV w_{\rho s}^*(r-(R-R')/2) r w_{\rho's}(r+(R-R')/2). \quad (2.42b)$$

Gleichung (2.42) für das Dipolmoment zeigt, daß ausgeprägte optische Resonanzen nur zu erwarten sind, falls die den Bandzuständen zugrunde liegende Symmetrie der Atomfunktionen einen Dipolübergang erlaubt. In der Gruppe der III-V-Halbleiter ist dies für Übergänge zwischen den Zuständen des s-artigen Leitungsbandes und den Zuständen der drei Valenzbänder (s. Fig. 1.1), die aus einer Mischung von p-Wellen entstehen, der Fall. Die vom Lichtfeld verursachten Intrabandübergänge ($\rho=\rho'$) in Gleichung (2.41) sollen im Folgenden vernachlässigt werden, da sie bei optischen Frequenzen nicht resonant sind [12, Glg. (3.14)]. Durch Einsetzen der Entwicklung (1.28) in Gleichung (2.41) entsteht der Hamiltonoperator in der Blochdarstellung

$$H_E(t) = - \sum_{kq\rho\rho's} a_{\rho,k+q/2,s}^+ a_{\rho',k-q/2,s} \mu_{k\rho\rho's} \cdot E_q(t). \quad (2.43)$$

Darin ist das Matrixelement $\mu_{\mathbf{k}\rho\rho'}$ definiert durch die Fourierdarstellung

$$\mu_{\rho\rho'}(\mathbf{R}-\mathbf{R}') = \sum_{\mathbf{k}} \mu_{\mathbf{k}\rho\rho'} e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}-\mathbf{R}')}. \quad (2.44a)$$

Mit Hilfe des Blochschen Theorems, Glg. (1.4) und Glg. (1.5), erhält man

$$\mu_{\mathbf{k}\rho\rho'} = e \int dV \phi_{\rho\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}) \mathbf{r} \phi_{\rho'\mathbf{k}}(\mathbf{r}). \quad (2.44b)$$

Im Zweiband-Modell (1.11) reduziert sich der Hamiltonoperator (2.43) mit $\rho \neq \rho'$ zu

$$H_{\mathbf{E}}(t) = - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{q}\mathbf{s}} (a_{\mathbf{c},\mathbf{k}+\mathbf{q}/2,\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{v},\mathbf{k}-\mathbf{q}/2,\mathbf{s}} \mu_{\mathbf{k}\mathbf{s}} + a_{\mathbf{v},\mathbf{k}+\mathbf{q}/2,\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{c},\mathbf{k}-\mathbf{q}/2,\mathbf{s}} \mu_{\mathbf{k}\mathbf{s}}^*) \cdot \mathbf{E}_{\mathbf{q}}(t). \quad (2.45)$$

Besteht das Lichtfeld aus einer kohärenten Mode

$$\mathbf{E}_{\mathbf{q}}(t) = \delta_{\mathbf{q}\mathbf{q}_0} \mathbf{E}_0(t) + \delta_{\mathbf{q},-\mathbf{q}_0} \mathbf{E}_0^*(t) \quad (2.46)$$

mit der komplexen Feldamplitude

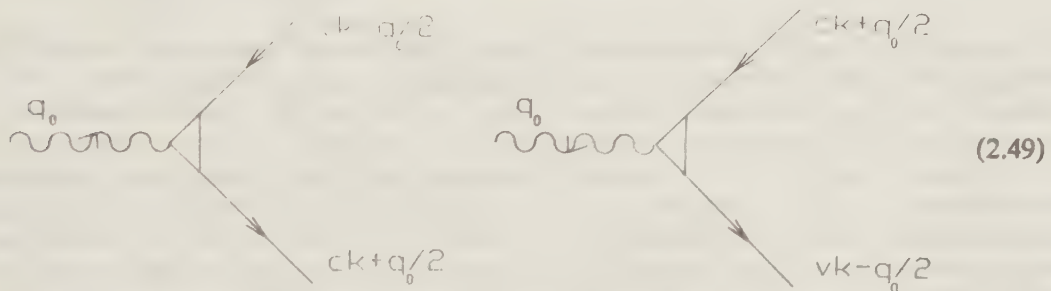
$$\mathbf{E}_0(t) = \mathbf{E}_0' e^{-i\omega_0 t}, \quad (2.47)$$

so erhält der Hamiltonoperator (2.45) die Gestalt

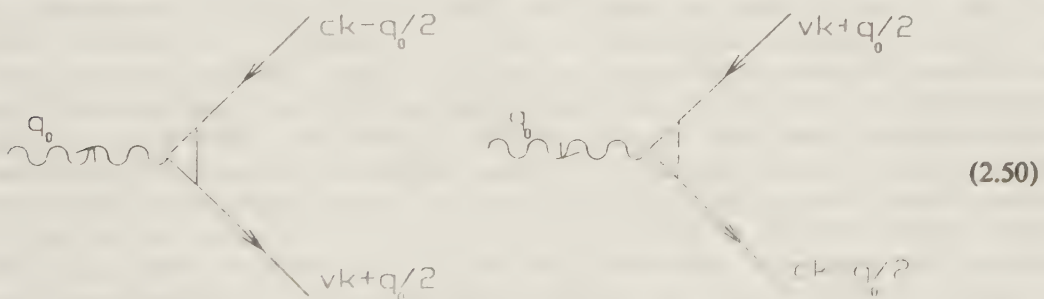
$$H_{\mathbf{E}}(t) = - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{s}} \left\{ a_{\mathbf{c},\mathbf{k}+\mathbf{q}_0/2,\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{v},\mathbf{k}-\mathbf{q}_0/2,\mathbf{s}} \mu_{\mathbf{k}\mathbf{s}} + a_{\mathbf{v},\mathbf{k}+\mathbf{q}_0/2,\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{c},\mathbf{k}-\mathbf{q}_0/2,\mathbf{s}} \mu_{\mathbf{k}\mathbf{s}}^* \right\} \cdot \mathbf{E}_0(t) \quad (2.48)$$

$$-\sum_{\mathbf{k}\mathbf{s}} \left(a_{\mathbf{c},\mathbf{k}-\mathbf{q}_0/2,\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{v},\mathbf{k}+\mathbf{q}_0/2,\mathbf{s}} \mu_{\mathbf{k}\mathbf{s}} + a_{\mathbf{v},\mathbf{k}-\mathbf{q}_0/2,\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{c},\mathbf{k}+\mathbf{q}_0/2,\mathbf{s}} \mu_{\mathbf{k}\mathbf{s}}^* \right) E_0^*(t).$$

An die Stelle der Größen E_0^* und E_0 treten bei der quantenmechanischen Behandlung des Lichtfeldes Terme, die proportional zu dem Erzeugungs- und dem Vernichtungsoperator eines Photons sind. In diesem Sinne kann man auch in der semi-klassischen Theorie von der Absorption oder der Emission von Lichtquanten sprechen. Der erste Term in der ersten Zeile von Gleichung (2.48) beschreibt folglich den Übergang eines Valenzbandelektrons in das Leitungsband unter Absorption eines Photons, das den Impuls $\mathbf{q}_0$ trägt. Im Elektron-Loch-Bild (1.18) handelt es sich hierbei um die optische Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares. Auf das Elektron-Loch-Paar wird dabei der Photonimpuls $\mathbf{q}_0$ übertragen. Der hierzu adjungierte Prozeß, die Emission eines Photons durch die Rekombination eines Elektron-Loch-Paares, wird durch den zweiten Term in der zweiten Zeile beschrieben. Diese Prozesse können durch die Diagramme



veranschaulicht werden. Die verbleibenden beiden Prozesse, das ist die Absorption eines Photons beim Übergang eines Elektrons vom Leitungsband in das Valenzband, bzw. die Emission eines Photons beim umgekehrten Vorgang, sind offenbar unter Energieerhaltung gar nicht möglich:



Es handelt sich hierbei um virtuelle Prozesse, die für kleine Verstimmung der Laserfrequenz gegen die Energie E_g der Bandlücke, d.h. für

$$|\omega_0 - E_g| \ll \omega_0 + E_g, \quad (2.51)$$

nur kleine Korrekturen zur Theorie liefern. Man kann diese Terme deshalb vernachlässigen. Diese Näherung ist bekannt unter der englischen Bezeichnung 'Rotating-Wave-Approximation' (RWA) [13, §III.4]. Eine weitere Vereinfachung ergibt sich daraus, daß der Betrag q_0 des Photonimpulses oftmals relativ klein ist im Vergleich zu den relevanten Impulsen k der erzeugten Ladungsträger. Er wird deshalb oftmals vernachlässigt. Für die Vielteilchentheorie ist die Vernachlässigung des Photonimpulses deshalb günstig, weil in dieser Näherung die räumliche Homogenität des Systems durch das Laserfeld nicht zerstört wird, was die Rechnungen sehr vereinfacht. Da der Vektor q_0 der Impulsübertrag auf die Elektron-Loch-Paare ist, erhält man so nur optisch erzeugte Paare, deren Schwerpunkt ruht. Mit den beschriebenen Näherungen wird der Hamiltonoperator (2.48) zu

$$H_E(t) = - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{s}} (a_{\mathbf{c}\mathbf{k}\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{v}\mathbf{k}\mathbf{s}} \boldsymbol{\mu}_{\mathbf{k}\mathbf{s}} \cdot \mathbf{E}_0(t) + a_{\mathbf{v}\mathbf{k}\mathbf{s}}^+ a_{\mathbf{c}\mathbf{k}\mathbf{s}} \boldsymbol{\mu}_{\mathbf{k}\mathbf{s}}^* \cdot \mathbf{E}_0^*(t)). \quad (2.52)$$

Im Folgenden soll das Dipolmatrixelement $\boldsymbol{\mu}$ noch etwas genauer untersucht werden. Der Vektorcharakter dieser Größe impliziert eine optische Anisotropie des Systems. Um zu verstehen, wie diese Anisotropie zustande kommt, genügt es, die Wannierfunktionen im Matrixelement (2.42) wie atomare Wellenfunktionen anzusehen. In den Halbleitern der III-V-Gruppe sind die Leitungsbandfunktionen in der Nähe des Γ -Punktes näherungsweise s-artig, während die Valenzbandfunktionen Mischungen p-artiger Wellenfunktionen sind. Die Mischung der p-Wellen kommt durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Hamiltonoperator (1.2) zustande. Es ist diese Wechselwirkung, die auch die optische Anisotropie hervorruft. Ohne die Spin-Bahn-Wechselwirkung wären die Valenzbandfunktionen p-artig und energetisch miteinander entartet. In diesem Fall wären zwar die einzelnen Beiträge der p_x -, p_y - und p_z -Funktionen zur Wechselwirkung mit dem Laserstrahl abhängig von der Polarisationsrichtung des Lichtfeldes, die Summe dieser Beiträge wäre jedoch richtungsunabhängig. Dieser Fall läßt sich in einem Zweibandmodell durch eine skalare Kopplung μE beschreiben. Durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung ist das SO-Band energetisch abgespalten (s. Fig. 1.1). Dadurch ist es möglich, durch Absorption von Photonen lediglich schwere und leichte Löcher, nicht aber Löcher im SO-Band zu erzeugen. Durch das Fehlen des SO-Beitrages wird der Absorptionskoeffizient richtungsabhängig. Eine noch stärkere optische Anisotropie findet man in quasi-zweidimensionalen Halbleiterschichten. In diesen Strukturen ist auch die energetische Entartung der schweren und der leichten Löcher am Γ -Punkt aufgehoben [5]. Es ist dann möglich, selektiv schwere oder leichte Löcher optisch zu erzeugen, und in der Tat beobachtet man gemäß der vektoriellen Kopplung $\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}$ im Hamiltonoperator (2.52) eine Abhängigkeit der Stärke der jeweiligen optischen Resonanz von der Polarisationsrichtung des Lichtfeldes [14].

Als Beispiel soll die Richtung des Dipolmomentes $\boldsymbol{\mu}$ für den Fall der Anregung von schweren Löchern bestimmt werden. Den beiden Bändern der schweren Löcher ist die Drehimpulsquantenzahl $j=3/2$ und die z-Komponente $j_z=\pm 3/2$ zuzuordnen. Die zugehörigen Zustandsvektoren sind

$$|j=3/2, j_z=+3/2\rangle = |\ell=1, m_\ell=+1\rangle |s=+1/2\rangle, \quad (2.53a)$$

$$|j=3/2, j_z=-3/2\rangle = |\ell=1, m_\ell=-1\rangle |s=-1/2\rangle. \quad (2.53b)$$

In diesen Zuständen besitzen die Elektronen einen eindeutigen Spinzustand. Dies ist nicht der Fall für das Band der leichten Löcher und für das SO-Band [6, Glg. (3.13)]. Nach Gleichung (2.53) gilt

$$w_{v,s=+1/2} \hat{=} |v, \ell=1, m_\ell=+1\rangle, \quad (2.54a)$$

$$w_{v,s=-1/2} \hat{=} |v, \ell=1, m_\ell=-1\rangle, \quad (2.54b)$$

und für das s-artige Leitungsband

$$w_{c,s} \hat{=} |c, \ell=m_\ell=0\rangle. \quad (2.54c)$$

Für das Dipolmatrixelement (2.42) folgt somit

$$\mu_{\pm=1/2} \propto \langle c, \ell=m_\ell=0 | \mathbf{r} | v, \ell=1, m_\ell=\pm 1 \rangle. \quad (2.55)$$

Die Richtung des Vektors μ ist durch den Winkelanteil des Matrixelementes (2.55) bestimmt. Die Winkelanteile der Wellenfunktionen sind die Kugelflächenfunktionen $Y_{0,0}=(4\pi)^{-1/2}$ für das Leitungsband und $Y_{1,\pm 1}$ für das Valenzband. Der Ortsvektor $\mathbf{r}$ sei zerlegt in

$$\mathbf{r} = z\mathbf{e}_z + \mathbf{r}_{xy}. \quad (2.56)$$

Mit Hilfe der Beziehung

$$z = \sqrt{4\pi/3} Y_{1,0} r \quad (2.57)$$

[2, Glg. (95.3)] und der Orthogonalität der Kugelflächenfunktionen $Y_{1,0}$ und $Y_{1,\pm 1}$ wird ersichtlich, daß das Matrixelement μ in der xy-Ebene liegt. In Halbleiterschichtstrukturen ist die xy-Ebene oftmals die Ebene der Schicht [4, Glg. (2.1.8) ff.]. Folglich verschwindet die optische Resonanz von Elektron-Loch-Paaren unter Beteiligung schwerer Löcher, falls das Lichtfeld senkrecht zur Schichtebene polarisiert ist. Dies wird in der Tat beobachtet

[14]. Der Vektor r_{xy} sei weiter zerlegt in

$$r_{xy} = 1/2 (r_+ e_- + r_- e_+) \quad (2.58a)$$

mit

$$r_{\pm} = x \pm iy, \quad (2.58b)$$

$$e_{\pm} = e_x \pm ie_y. \quad (2.58c)$$

Es gilt

$$r_{\pm} = \mp \sqrt{8\pi/3} Y_{1,\pm 1} r \quad (2.59)$$

[2, Glg. (95.5)]. Damit ergibt sich für das Dipolmatrixelement (2.55)

$$\mu_{s=\pm 1/2} = \mp \mu e_{\pm}. \quad (2.60)$$

Man erhält also im Hamiltonoperator (2.52) die Kopplungen

$$a_{c,1/2}^+ a_{v,1/2} \mu(E_{ox} - iE_{oy}) - a_{c,-1/2}^+ a_{v,-1/2} \mu(E_{ox} + iE_{oy}) \quad (2.61)$$

und die zugehörigen hermitesch konjugierten Ausdrücke. Der Ausdruck (2.61) zeigt, daß die beiden Spinzustände $s=\pm 1/2$ betragsmäßig gleich stark, jedoch mit unterschiedlichen Phasenfaktoren angetrieben werden. Dies bewirkt, daß der Spinzustand optisch erzeugter Exzitonen vom Polarisationszustand des Lichtfeldes abhängt [15]. Weiterhin zeigt der Ausdruck (2.61), daß die Kopplungstärke des Lichtes an die schweren Löcher unabhängig von der Polarisationsrichtung des Laserfeldes innerhalb der xy-Ebene ist. Hierdurch erklärt sich, daß der exzitonische Stark-Effekt (s. Kapitel 9) bei Verwendung von linear polarisiertem Licht unabhängig davon ist, ob Pump- und Teststrahl parallel oder senkrecht zueinander polarisiert sind [15].

Eine ähnliche Analyse zeigt, daß die optische Anregung leichter Löcher im Gegensatz zur Anregung schwerer Löcher auch mit Licht erfolgen kann, welches senkrecht zur xy-Ebene polarisiert ist. Dagegen ist die optische Resonanz leichter Löcher in der xy-Ebene schwächer als die der schweren Löcher. Für die Absolutquadrate der optischen Matrixelemente, zu denen der Absorptionskoeffizient proportional ist, findet man mit Hilfe der Glebsch-Gordon-Koeffizienten [2, §41] für die Erzeugung schwerer bzw. leichter Löcher die Verhältnisse 1:1/3 bei Anregung in der xy-Ebene und 0:2/3 bei

Anregung senkrecht zur xy-Ebene [4, Glg. (2.1.8) ff.].

Im folgenden soll der Hamiltonoperator (2.52), um die Notation zu vereinfachen, in der skalaren Form

$$H_E(t) = - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{s}} (a_{c\mathbf{k}\mathbf{s}}^+ a_{v\mathbf{k}\mathbf{s}} \mu_{\mathbf{k}} E_0(t) + a_{v\mathbf{k}\mathbf{s}}^+ a_{c\mathbf{k}\mathbf{s}} \mu_{\mathbf{k}}^* E_0^*(t)) \quad (2.62)$$

verwendet werden, wie er sich nach (2.61) für ein Lichtfeld ergibt, das in Richtung y polarisiert ist.

Die Größenordnung des optischen Matrixelementes läßt sich mit der $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Theorie [16] abschätzen. Für ein isotropes Zweibandmodell erhält man in der Effektivmassennäherung für die Größe $\mu_0 = \mu_{\mathbf{k}=0}$:

$$|\mu_0| = \frac{e}{\sqrt{4mE_g}} \quad (2.63)$$

Die Abhängigkeit des Dipolmatrixelementes von der Wellenzahl $\mathbf{k}$ ist relativ schwach. Dies liegt daran, daß die Wannierfunktionen in Gleichung (2.42) für $\mathbf{R} \neq \mathbf{R}'$ nur einen geringen Überlapp besitzen. Im Grenzfall verschwindenden Überlapps erhält man

$$\mu(\mathbf{R}-\mathbf{R}') \simeq \mu_0 V \delta(\mathbf{R}-\mathbf{R}'), \quad (2.64a)$$

und

$$\mu_{\mathbf{k}} \simeq \mu_0. \quad (2.64b)$$

In einigen Fällen benötigt man jedoch die $\mathbf{k}$ -Abhängigkeit des optischen Matrixelementes, um die Konvergenz gewisser Integrale zu sichern (s. Glg. (3.51)). Aus der $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Theorie folgt die Formel

$$\mu_{\mathbf{k}} = \frac{\mu_0}{1 + k^2/2mE_g} \quad (2.65a)$$

[12, Glg. (3.28e)]. Aus den Gleichung (2.44) und (2.65a) erhält man anstelle von Gleichung (2.64a)

$$\mu(\mathbf{R}-\mathbf{R}') = \mu_0 V \delta_{R_0}(\mathbf{R}-\mathbf{R}') \quad (2.65b)$$

mit der 'verbreiterten δ -Funktion'

$$\delta_{R_0}(\mathbf{R}-\mathbf{R}') = \frac{1}{4\pi R_0^2 R} e^{-R/R_0} \quad (2.66)$$

und der Kopplungslänge

$$R_0 = \frac{1}{\sqrt{2mE_g}} \quad (2.67)$$

$$= \sqrt{2} |\mu_0|/e.$$

In GaAs beträgt $R_0 \simeq 6 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$, das Lichtfeld koppelt Leitungs- und Valenzband also nur über eine Länge, die etwa einer Gitterkonstanten entspricht.

3. DIE OPTISCHE SUSZEPTIBILITÄT EINES HALBLEITERS

3.1 Pump- und Teststrahl-Experimente

Das Ziel dieser Arbeit ist die Berechnung der optischen Eigenschaften von Halbleitern unter verschiedenen Anregungsbedingungen. Insbesondere ist dabei an Experimente gedacht, in denen die Anregung des Halbleiters durch einen intensiven Laserstrahl, den sogenannten Pumpstrahl, erfolgt. Durch einen zweiten Laserstrahl, den Teststrahl, können die vom Pumpfeld hervorgerufenen Veränderungen des Systems sondiert werden. Diese Art von Experimenten nennt man Pump- und Teststrahl-Experimente.

Ein starkes Laserfeld erzeugt nach Gleichung (2.62) Elektron-Loch-Paare im Halbleiter. Diese optisch erzeugten Ladungsträger können je nach Frequenz, Intensität und Dauer des Pumpulses in ganz unterschiedlicher Form vorliegen (s. Kapitel 4). In jedem Fall ändern sich in Anwesenheit von Ladungsträgern die optischen Konstanten des Kristalls.

Eine Aufgabe besteht in der Bestimmung der Änderung des Brechungsindex und des Absorptionskoeffizienten des Pumpstrahles selbst, etwa als Funktion der Laserfrequenz. Die optischen Spektren, die man auf diesem Wege erhält, enthalten allerdings nicht die gesamte gewünschte Information, denn zu verschiedenen Frequenzen des Pumpfeldes liegt das System ja in veränderter Form vor.

Um optische Spektren eines Halbleiters zu jeweils einer einzigen Anregungssituation zu erhalten, benötigt man deshalb einen zweiten Strahl, den Teststrahl, zur Sondierung. Damit dieser nicht ebenfalls die Eigenschaften des Systems verändert, hat man seine Intensität möglichst gering zu wählen. Dann kann angenommen werden, daß zu einer Zeit immer nur ein einziges Teststrahl-Photon das System beeinflusst. Die zugehörige Theorie ist linear in der Feldstärke des Testlasers und linear in den Veränderungen des Systems, die vom Teststrahl herrühren. Nichtlinear sind die optischen Spektren des Teststrahles dagegen in Bezug auf die Feldstärke des Pump lasers.

Zu Beginn wird in dieser Arbeit die optische dielektrische Funktion eines Halbleiters für den Fall verschwindender Pumpintensität bestimmt. Ferner wird für die Temperatur des Kristalls zunächst $T=0\text{K}$ angenommen. Der Halbleiter befindet sich also in seinem Grundzustand, der durch ein Elektron-Loch-Vakuum charakterisiert ist. Damit gelangt man zu der linearen optischen Suszeptibilität des Halbleiters, die einen günstigen Ausgangspunkt für die späteren Diskussionen bildet.

3.2 Die Gleichung der optischen Polarisation

Der Erwartungswert des Hamiltonoperators (2.62), der die Wechselwirkung der Elektronen mit einem kohärenten Lichtfeld angibt, kann in der Form

$$\langle H_E(t) \rangle = -V(P^* E_0(t) + P E_0^*(t)) \quad (3.1)$$

geschrieben werden. Hierin ist

$$P = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}s} \mu_{\mathbf{k}}^* \langle a_{\mathbf{vks}}^+ a_{\mathbf{cks}} \rangle \quad (3.2)$$

die makroskopische optische Dipoldichte. Der Erwartungswert dieser Größe geht in die Maxwell-Gleichung des elektromagnetischen Feldes ein und bestimmt die optische Suszeptibilität bzw. die optische dielektrische Funktion des Systems. Man hat folglich eine Gleichung für die Größe

$$p_{\mathbf{k}s} = \langle a_{\mathbf{vks}}^+ a_{\mathbf{cks}} \rangle \quad (3.3)$$

herzuleiten. Hierin bezeichnet das Symbol $\langle \cdot \rangle$ den quantenmechanischen Erwartungswert eines Operators. Quantenmechanische Erwartungswerte sind mit Hilfe des statistischen Operators ρ des Systems definiert:

$$\langle X \rangle = \text{Sp}(\rho X). \quad (3.4)$$

Hierin bezeichnet 'Sp' die Spur über einen vollständigen Satz von Zuständen. Da man den statistischen Operator ρ aber für ein Nichtgleichgewichtssystem im allgemeinen nicht kennt, ist diese Definition nicht zur Bestimmung von Erwartungswerten geeignet. Stattdessen sucht man zur Bestimmung des Erwartungswertes eines Operators eine Lösung seiner Bewegungsgleichung. Ein Operator X folgt im Heisenberg-Bild der Bewegungsgleichung

$$i\dot{X} = [X, H], \quad (3.5)$$

worin H der Hamiltonoperator des Systems ist. Mit den Hamiltonoperatoren (1.17), (2.14), (2.29) und (2.62) erhält man aus Gleichung (3.5) für die optische Polarisation $p_{\mathbf{k}s}$ die Bewegungsgleichung

$$i\dot{p}_{\mathbf{k}s} = (\epsilon_{\mathbf{ck}} - \epsilon_{\mathbf{vk}}) p_{\mathbf{k}s} - (n_{\mathbf{vks}} - n_{\mathbf{cks}}) \mu_{\mathbf{k}} E_0(t)$$

$$\begin{aligned}
& - \sum_{\rho k' q s'} V_q (\langle a_{v, k+q, s}^+ a_{\rho, k'-q, s}^+ a_{\rho k' s'} a_{c k s} \rangle - \langle a_{v k s}^+ a_{\rho, k'-q, s}^+ a_{\rho k' s'} a_{c, k-q, s} \rangle) \\
& + \sum_q g_q (\langle a_{v, k+q, s}^+ Q_q a_{c k s} \rangle - \langle a_{v k s}^+ Q_q a_{c, k-q, s} \rangle)
\end{aligned} \quad (3.6)$$

mit dem Phononoperator

$$Q_q = B_q + B_{-q}^+ \quad (3.7)$$

Der erste Term auf der rechten Seite von Gleichung (3.6) beschreibt die freie optische Polarisationsschwingung von Elektron-Loch-Paaren. Im zweiten Term tritt das Laserfeld E_0 auf, das die Schwingung antreibt. Dieser Quellterm ist vermindert um den Faktor

$$n_{v k s} - n_{c k s} = n_{v k s} (1 - n_{c k s}) - n_{c k s} (1 - n_{v k s}). \quad (3.8)$$

Dieser Faktor beschreibt die Sättigung des optischen Übergangs infolge der Auffüllung des Fermion-Zustandsraumes. Die beiden Terme auf der rechten Seite von Gleichung (3.8) sind proportional zur Rate der Absorption bzw. zur Rate der stimulierten Emission von Lichtquanten. Die zweite Zeile in Gleichung (3.6) beschreibt den Einfluß der Coulombwechselwirkung der erzeugten Ladungsträger. Insbesondere ist in diesem Term die anziehende Coulombwechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern enthalten, die zur Bildung gebundener Elektron-Loch-Paare, den Exzitonen, führen kann. Der vierte Term in Gleichung (3.6) schließlich gibt den Einfluß der Wechselwirkung zwischen den Elektronen und den longitudinal optischen Phononen wieder.

Die Bewegungsgleichung der Größe $p_{k s}$, Glg. (3.3), in der zwei Fermioperatoren enthalten sind, führt also auf Erwartungswerte, in denen zwei weitere Fermioperatoren bzw. ein zusätzlicher Phononoperator auftreten. Man kann nun auch für diese neuen Korrelationsfunktionen Bewegungsgleichungen aufstellen, in denen allerdings wiederum kompliziertere Erwartungswerte auftreten, usw. Um zu einem geschlossenen Gleichungssystem zu gelangen, muß man deshalb an geeigneter Stelle Faktorisierungen von Erwartungswerten vornehmen. Je später dies geschieht, umso mehr physikalische Effekte sind in der Theorie enthalten. Dieses Verfahren wird jedoch schnell kompliziert und unübersichtlich. In dieser für die Vielteilchentheorie typischen Situation hat sich die Technik der Greenschen Funktionen bewährt, von der in späteren Abschnitten Gebrauch gemacht wird. Zur Berechnung der linearen optischen Suszeptibilität des Halbleiters kann man sich jedoch noch auf die einfachsten Näherungen zu Gleichung (3.6) beschränken.

3.3 Abschirmung durch LO-Phononen: die ϵ_0 -Approximation

Zunächst soll aus Gleichung (3.6) vorübergehend der Beitrag der longitudinal optischen Phononen eliminiert werden. Hierzu ist ein Vorgriff auf die Ergebnisse des Abschnitts 6.6 notwendig.

Bewegt sich ein Elektron oder ein Loch durch einen polaren Kristall, so ruft es entlang seiner Bahn Verzerrungen des Kristallgitters hervor. Dieser Effekt ist beschreibbar als die virtuelle Emission von Phononen. Man faßt das Elektron bzw. das Loch zusammen mit der 'Phononwolke', die es umgibt, als ein neues Fermiteilchen, das sogenannte Polaron, auf. Polaronen besitzen eine größere Trägheit als 'nackte' Ladungsträger. Weiterhin ist die Energie von Polaronen gegenüber den Einteilchenenergien ϵ_{jk} nackter Ladungsträger um die Wechselwirkungsenergie der Ladungsträger mit dem Kristallgitter abgesenkt. Diese Effekte werden näherungsweise erfaßt, indem man die effektiven Massen m_j von Elektronen und Löchern durch die größeren effektiven Polaronmassen ersetzt und anstelle der Bandlücke E_g die durch den Polaroneneffekt verringerte Bandlücke verwendet.

Eine weitere Auswirkung der Elektron-Phonon-Wechselwirkung besteht in einer Verminderung der Coulombkräfte zwischen den Ladungsträgern. Die von den Ladungsträgern hervorgerufenen Verzerrungen im polaren Gitter stellen mikroskopische Polarisationsfelder dar, die die nackte Ladung eines Elektrons oder eines Loches abschirmen. So wird auch die effektive Anziehungskraft zwischen Elektronen und Löchern durch optische Phononen wesentlich vermindert, was zu einer Verringerung der Bindungsenergie von Exzitonen führt. Das Coulombpotential V in Gleichung (3.6) ist bereits durch die dielektrische Konstante ϵ_∞ vermindert (s. Glg. (2.10)), die die Abschirmung der Ladungsträger durch die Rumpfelektronen und durch die Interbandcoulombstreuung berücksichtigt. Es ist plausibel, daß der Beitrag der optischen Phononen zur Abschirmung zu einer Ersetzung des Wertes ϵ_∞ durch einen größeren Wert führt. Die folgende Rechnung verfolgt den Zweck, dies explizit zu zeigen. Eine vollständige Theorie der Elektron-Phonon-Wechselwirkung, die auch den Polaroneneffekt erfaßt, ergibt sich allerdings erst in Abschnitt 6.6 bei der Berechnung der Selbstenergie der Ladungsträger.

Mit Hilfe der Heisenberg-Gleichung (3.5) und den Hamilton-Operatoren (2.20) und (2.29) erhält man die Bewegungsgleichung

$$-\ddot{Q}_q = \omega_L^2 Q_q - 2\omega_L g_{-q} \sum_{\rho ks} a_{\rho, k-q, s}^+ a_{\rho ks}. \quad (3.9)$$

Die Bewegungsgleichung des auf der rechten Seite in Gleichung (3.9) auftretenden Produktes von Fermioperatoren lautet

$$i \frac{d}{dt} a_{\rho, k-q, s}^+ a_{\rho ks} = (\epsilon_{\rho k} - \epsilon_{\rho, k-q}) a_{\rho, k-q, s}^+ a_{\rho ks} + \dots \quad (3.10)$$

Vernachlässigt man an dieser Stelle die in Gleichung (3.10) durch '...' bezeichneten Wechselwirkungsterme, so kann man die Gleichungen (3.9) und (3.10) durch Fouriertransformation lösen und erhält

$$Q_{\mathbf{q}} \simeq -g_{-\mathbf{q}} \sum_{\rho \mathbf{k} \mathbf{s}} D_{0,L}(\epsilon_{\rho \mathbf{k}} - \epsilon_{\rho, \mathbf{k}-\mathbf{q}}) a_{\rho, \mathbf{k}-\mathbf{q}, \mathbf{s}}^+ a_{\rho \mathbf{k} \mathbf{s}}. \quad (3.11)$$

Hierin ist

$$D_{0,L}(\omega) = \frac{2\omega_L}{\omega^2 - \omega_L^2} \quad (3.12)$$

die Greensche Funktion der longitudinal optischen Phononen. Gleichung (3.11) genügt für den momentanen Zweck, ist aber eigentlich keine akzeptable Näherung. Das erkennt man schon daran, daß der Phononoperator in der Form (3.11) nicht mehr mit den Fermioperatoren der Ladungsträger vertauschbar ist. Setzt man nun den Ausdruck (3.11) in die Bewegungsgleichung (3.6) der optischen Polarisation ein, so entsteht

$$i\dot{p}_{\mathbf{k} \mathbf{s}} = (\epsilon_{\mathbf{c} \mathbf{k}} - \epsilon_{\mathbf{v} \mathbf{k}}) p_{\mathbf{k} \mathbf{s}} - (n_{\mathbf{v} \mathbf{k} \mathbf{s}} - n_{\mathbf{c} \mathbf{k} \mathbf{s}}) \mu_{\mathbf{k}} E_0(t) \quad (3.13)$$

$$- \sum_{\rho \mathbf{k}' \mathbf{q} \mathbf{s}'} W(\mathbf{q}, \epsilon_{\rho \mathbf{k}'} - \epsilon_{\rho, \mathbf{k}'-\mathbf{q}}) (\langle a_{\mathbf{v}, \mathbf{k}+\mathbf{q}, \mathbf{s}}^+ a_{\rho, \mathbf{k}'-\mathbf{q}, \mathbf{s}'}^+ a_{\rho \mathbf{k}' \mathbf{s}'} a_{\mathbf{c} \mathbf{k} \mathbf{s}} \rangle - \langle a_{\mathbf{v} \mathbf{k} \mathbf{s}}^+ a_{\rho, \mathbf{k}'-\mathbf{q}, \mathbf{s}'}^+ a_{\rho \mathbf{k}' \mathbf{s}'} a_{\mathbf{c}, \mathbf{k}-\mathbf{q}, \mathbf{s}} \rangle).$$

In Gleichung (3.13) wurde das durch Phononen dynamisch abgeschirmte Coulombpotential

$$W(\mathbf{q}, \omega) = \frac{V_{0\mathbf{q}}}{\epsilon_{\text{Ph}}(\mathbf{q}, \omega)} \quad (3.14)$$

$$= V_{\mathbf{q}} + |g_{\mathbf{q}}|^2 D_{0,L}(\omega)$$

eingeführt [12, Glg. (4.23)]. Die Funktion ϵ_{Ph} ist die longitudinale dielektrische Funktion des nicht angeregten Halbleiters. Nimmt man an, daß die Funktion $\epsilon_{\text{Ph}}(\mathbf{q}, \omega)$ näherungsweise unabhängig vom Wellenvektor $\mathbf{q}$ ist, so besteht die Möglichkeit, das

Matrizelement g_q der Elektron-Phonon-Wechselwirkung durch die experimentell gut zugängliche Größe $\epsilon_0 = \epsilon_{Ph}(\omega=0)$ festzulegen. Aus Gleichung (3.14) ergibt sich

$$|g_q|^2 = \frac{2\pi e^2 \omega_L}{\epsilon^* q^2} \quad (3.15)$$

mit

$$\frac{1}{\epsilon^*} = \frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0}. \quad (3.16)$$

Die Größe (3.15) ist das Matrizelement der Elektron-Phonon-Kopplung im Fröhlich-Modell [7, §29]. Führt man ferner die Frequenz ω_T ein durch die Definition

$$\omega_T^2 = \frac{\epsilon_\infty}{\epsilon_0} \omega_L^2, \quad (3.17)$$

so kann man die dielektrische Funktion $\epsilon_{Ph}(\omega)$ schreiben als

$$\frac{\epsilon_{Ph}(\omega)}{\epsilon_\infty} = 1 - \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\omega^2 - \omega_T^2}. \quad (3.18)$$

Die Nullstellen der dielektrischen Funktion ($\omega = \pm \omega_L$) bestimmen die Frequenzen der longitudinalen Eigenmoden des Systems, während die Polstellen ($\omega = \pm \omega_T$) die Frequenzen der transversalen Moden liefern. Die Frequenz ω_T erweist sich also als die Frequenz der transversal optischen Phononen. Die Beziehung (3.17), die die Frequenzen ω_L und ω_T verknüpft, heißt Lydanne-Sachs-Teller-Relation.

In vielen Fällen ist noch eine weitere Vereinfachung der Gleichung (3.13) der optischen Polarisation gerechtfertigt. Diese Vereinfachung betrifft das Frequenzargument des abgeschirmten Coulombpotentials W , Glg. (3.14). In diesem Ausdruck tritt in der Greenschen Funktion D_{0L} der Phononen die Rückstoßenergie $\omega = \epsilon_{\rho k} - \epsilon_{\rho, k-q}$ der Ladungsträger neben der Energie ω_L der Phononen auf. In einem Exzitonsystem bildet der inverse Bohrsche Radius eine typische Wellenzahl, und in einem System freier Ladungsträger ist der Fermi-Impuls eine charakteristische Größe. In beiden Fällen sind die zugehörigen kinetischen Energien $\epsilon_{\rho k}$ der Ladungsträger in der Regel klein gegen die Energie ω_L der Phononen. In Galliumarsenid beispielsweise beträgt die Exzitonbindungsenergie $E_0 = me^4/2\epsilon_0^2$ etwa 5 meV, während die Phononenergie ω_L etwa 37 meV beträgt. Dies bedeutet, daß die Dynamik der optischen Phononen bedeutend rascher verläuft als die der Ladungsträger. Man kann sich also vorstellen, daß sich das

Kristallgitter nahezu instantan auf die jeweilige Ladungsträgerkonfiguration einstellt. Die abschirmende Wirkung des Kristallgitters kommt demnach voll zur Geltung. Die Näherung, die diese physikalische Situation beschreibt, ist die sogenannte ϵ_0 -Approximation [12, §4.1]: man vernachlässigt im abgeschirmten Coulombpotential W , Glg. (3.14), die Rückstoßenergie ω der Ladungsträger gegen die Phononenergie ω_L und erhält

$$W(\mathbf{q}, \omega) \simeq \frac{V_{0\mathbf{q}}}{\epsilon_0}. \quad (3.19)$$

In Abschnitt 6.6, bei der Berechnung der Selbstenergie der Ladungsträger, wird erkennbar, daß durch die Näherung (3.19) genau die für den Polaroneneffekt verantwortlichen Beiträge verloren gehen. Deshalb sind von nun an die Einteilchenenergien $\epsilon_{\mathbf{pk}}$ als Polaronenergien anzusehen. Aufgrund des Auftretens der statischen dielektrischen Konstanten ϵ_0 im Potential (3.19) spricht man bei dieser Näherung von 'statischer Abschirmung'. Unmißverständlicher wäre die Bezeichnung 'instantane Abschirmung'. Im Grenzfall statischer Abschirmung ist der Beitrag der Phononen zur longitudinalen dielektrischen Funktion gegeben durch den Wert $\epsilon_0 - \epsilon_\infty$.

Im Folgenden wird zunächst von der ϵ_0 -Approximation Gebrauch gemacht. Von dieser Näherung muß nur abgegangen werden, wenn die Dynamik der Ladungsträger und die Dynamik der optischen Phononen auf einer vergleichbaren Zeitskala stattfindet. Dies ist in hochdichten Elektron-Loch-Plasmen der Fall (vgl. Abschnitt 6.5). In der Bewegungsgleichung (3.6), in der die optischen Phononen explizit auftreten, ist das Coulombpotential V_0 durch die dielektrische Konstante ϵ_∞ abgeschirmt. Nach der adiabatischen Elimination der Phononen gemäß Gleichung (3.11) und Gleichung (3.19) treten in der Bewegungsgleichung (3.13) die Phononen nicht mehr explizit auf, und das Coulombpotential V_0 ist durch die dielektrische Konstante ϵ_0 abgeschirmt. Ferner stellen die Einteilchenenergien in Gleichung (3.6) die Energien nackter Ladungsträger dar, während es sich bei den Einteilchenenergien in Gleichung (3.13) um Polaronenergien handelt. In der Literatur ist es aber nicht üblich, diese Unterschiede explizit zu kennzeichnen. Es soll deshalb folgende Vereinbarung gelten:

Vereinbarung:

Bei der expliziten Behandlung der optischen Phononen (in den Abschnitten 6.5 und 6.6 sowie in Kapitel 8) bezeichnen die Energien $\epsilon_{\mathbf{pk}}$ die Energien nackter Ladungsträger, und das Coulombpotential ist $V_{\mathbf{q}} = V_{0\mathbf{q}} / \epsilon_\infty$. Im Rahmen der ϵ_0 -Approximation bezeichnen die Energien $\epsilon_{\mathbf{pk}}$ Polaronenergien, und das Coulombpotential ist $V_{\mathbf{q}} = V_{0\mathbf{q}} / \epsilon_0$.

In die transversale dielektrische Funktion, die den optischen Brechungsindex des Materials bestimmt, geht übrigens in beiden Fällen die dielektrische Konstante ϵ_∞ ein (s. Glg. (3.52)), da die Phononen optischen Frequenzen nicht folgen können.

3.4 Die Hartree-Fock-Approximation

In diesem Abschnitt wird die einfachste Näherung zu Gleichung (3.13), die Hartree-Fock-Approximation, besprochen. In dieser Näherung werden die Korrelationseffekte zwischen den erzeugten Ladungsträgern vernachlässigt. Dies ist nur in wenigen Fällen, etwa bei der Beschreibung virtueller Elektron-Loch-Paare (s. Kapitel 9 und 10), tatsächlich gerechtfertigt. Für die lineare optische Suszeptibilität des Halbleiters erweist sich die Hartree-Fock-Approximation jedoch als **exakt**.

Man betrachte den ersten der beiden Erwartungswerte von vier Fermioperatoren in Gleichung (3.13). Die Hartree-Fock-Approximation besteht in der Faktorisierung solcher Erwartungswerte [17, §3.4]:

$$\begin{aligned} \langle a_{\mathbf{v},\mathbf{k}+\mathbf{q},s}^+ a_{\rho,\mathbf{k}'-\mathbf{q},s'}^+ a_{\rho\mathbf{k}s} a_{\mathbf{c}\mathbf{k}s} \rangle &= \langle a_{\mathbf{v},\mathbf{k}+\mathbf{q},s}^+ a_{\mathbf{c}\mathbf{k}s} \rangle \langle a_{\rho,\mathbf{k}'-\mathbf{q},s'}^+ a_{\rho\mathbf{k}s} \rangle \\ &- \langle a_{\mathbf{v},\mathbf{k}+\mathbf{q},s}^+ a_{\rho\mathbf{k}s} \rangle \langle a_{\rho,\mathbf{k}'-\mathbf{q},s'}^+ a_{\mathbf{c}\mathbf{k}s} \rangle. \end{aligned} \quad (3.20)$$

Die Zerlegung (3.20) erfolgt nach dem Schema des Wickschen Theorems [18, S. 83], das jedoch nur für den Vakuumzustand exakt ist. Der erste Term auf der rechten Seite der Beziehung (3.20) ist der sogenannte Hartree-Term. Aufgrund der prinzipiellen Ununterscheidbarkeit mikroskopischer Teilchen muß auch der zweite Ausdruck, der Austausch- oder Fock-Term, zugelassen werden. Das Vorzeichen dieses Beitrags ergibt sich daraus, daß in diesem Ausdruck die Reihenfolge der Operatoren eine ungerade Permutation der ursprünglichen Reihenfolge ist. Die Beziehung (3.20) kann noch weiter vereinfacht werden. Nach Gleichung (2.62) ändert sich beim optischen Übergang nicht der Spinzustand eines Elektrons. Deshalb kann angenommen werden, daß keine Nichtdiagonalelemente von Erwartungswerten zweier Fermioperatoren bezüglich der Spinquantenzahl auftreten:

$$\langle a_{\rho\mathbf{k}s}^+ a_{\rho\mathbf{k}'s'} \rangle = \delta_{ss'} \langle a_{\rho\mathbf{k}s}^+ a_{\rho\mathbf{k}s} \rangle. \quad (3.21)$$

Ferner läßt sich im Grenzfall großer Wellenlänge des Lichtfeldes annehmen, daß die räumliche Homogenität des Systems auch unter der Störung näherungsweise erhalten bleibt. Mit Hilfe der Entwicklung (1.28) erhält man

$$\langle a_{\rho\mathbf{k}s}^+ a_{\rho\mathbf{k}'s} \rangle = \frac{1}{V} \int dV \int dV' e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}-\mathbf{k}'\cdot\mathbf{R}')} \langle \Psi_{\rho 0}^+(\mathbf{R}) \Psi_{\rho s}(\mathbf{R}') \rangle. \quad (3.22)$$

In einem räumlich homogenen System kann die auf der rechten Seite von Gleichung

(3.22) auftretende Korrelationsfunktion nur von der Differenz $\mathbf{R}-\mathbf{R}'$ abhängen [17, S. 7]:

$$\langle \Psi_{\rho s}^+(\mathbf{R}) \Psi_{\rho' s}(\mathbf{R}') \rangle = \langle \Psi_{\rho s}^+(\mathbf{R}-\mathbf{R}') \Psi_{\rho' s}(0) \rangle. \quad (3.23)$$

Hieraus folgt

$$\begin{aligned} \langle a_{\mathbf{k}s}^+ a_{\rho' \mathbf{k}' s} \rangle &= \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \int dV e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}} \langle \Psi_{\rho s}^+(\mathbf{R}) \Psi_{\rho' s}(0) \rangle \\ &= \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \langle a_{\rho \mathbf{k}s}^+ a_{\rho' \mathbf{k}s} \rangle. \end{aligned} \quad (3.24)$$

Mit den Gleichungen (3.21) und (3.24) vereinfacht sich die Beziehung (3.20) zu

$$\begin{aligned} \langle a_{\mathbf{v}, \mathbf{k}+\mathbf{q}, s}^+ a_{\rho, \mathbf{k}'-\mathbf{q}, s}^+ a_{\rho' \mathbf{k}' s} a_{\mathbf{c} \mathbf{k} s} \rangle &\simeq \delta_{\mathbf{q}, 0} p_{\mathbf{k}s} n_{\rho \mathbf{k}' s} \\ &- \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'-\mathbf{q}} \delta_{ss'} (\delta_{\rho c} p_{\mathbf{k}' s} n_{\mathbf{c} \mathbf{k} s} + \delta_{\rho v} p_{\mathbf{k}s} n_{\mathbf{v} \mathbf{k}' s}). \end{aligned} \quad (3.25)$$

Setzt man Gleichung (3.25) und die analoge Beziehung für den letzten Term in Gleichung (3.13) in Gleichung (3.13) ein, so ergibt sich für die Gleichung der optischen Polarisation in der Hartree-Fock-Näherung [19]:

$$i\dot{p}_{\mathbf{k}} = (e_{\mathbf{c}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{v}\mathbf{k}}) p_{\mathbf{k}} - (n_{\mathbf{v}\mathbf{k}} - n_{\mathbf{c}\mathbf{k}}) \left[\mu_{\mathbf{k}} E_0(t) + \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'} \right]. \quad (3.26)$$

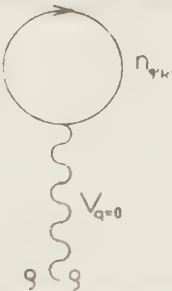
In dieser Gleichung wurde nun der Spinindex unterdrückt, denn da das Lichtfeld beide Spinrichtungen gleichstark antreibt, läßt sich annehmen, daß die auftretenden Größen nicht vom Spin abhängen. Der Vergleich von Gleichung (3.26) mit der ersten Zeile in Gleichung (3.13) zeigt, daß durch die Coulombwechselwirkung der Ladungsträger zu dem Beitrag μE_0 des Laserfeldes das innere Feld $\sum V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'}$ binzugeordnet ist. In Abschnitt 3.5 zeigt sich, daß dieser Term die anziehende Wechselwirkung der Elektronen und Löcher beschreibt. Weiterhin treten in Gleichung (3.26) anstelle der nackten Einteilchenenergien $\epsilon_{\rho \mathbf{k}}$ renormierte Einteilchenenergien $e_{\rho \mathbf{k}}$ auf. Diese Energien sind gegeben durch

$$e_{\rho\mathbf{k}} = \epsilon_{\rho\mathbf{k}} + \Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^{\text{HF}} \quad (3.27)$$

mit der Hartree-Fock-Selbstenergie

$$\Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^{\text{HF}} = \sum_{\rho'\mathbf{k}'\mathbf{q}\mathbf{s}'} V_{\mathbf{q}} n_{\rho'\mathbf{k}'} (\delta_{\mathbf{q},0} - \delta_{\rho\rho'} \delta_{\mathbf{s}\mathbf{s}'} \delta_{\mathbf{q},\mathbf{k}-\mathbf{k}'}). \quad (3.28)$$

Der erste Beitrag zu Gleichung (3.28) ist die Hartree-Selbstenergie Σ^{H} . Sie gibt die Änderung der Einteilchenenergie aufgrund der Wechselwirkung eines Elektrons mit der gemittelten Ladungsdichte wieder. Graphisch stellt man die Hartree-Selbstenergie dar durch das Diagramm



$$(3.29)$$

Da bisher das Teilchenbild ($\rho=c,v$) anstelle des Elektron-Loch-Bildes verwendet wurde, sind in Gleichung (3.28) noch die Beiträge der Wechselwirkung mit dem vollen Valenzband (s. Glg. (2.16)) enthalten, die aber bereits den ungestörten Energien $\epsilon_{\rho\mathbf{k}}$ zuzurechnen sind. In der Summe

$$\sum_{\rho'\mathbf{k}'\mathbf{s}'} n_{\rho'\mathbf{k}'} = \sum_{\mathbf{k}'\mathbf{s}'} (n_{e\mathbf{k}'} - n_{h,-\mathbf{k}'} + 1) \quad (3.30)$$

muß deshalb der Term $\propto 1$ entfallen. Da andererseits in undotierten Systemen aufgrund der Ladungsneutralität

$$\sum_{\mathbf{k}'\mathbf{s}'} n_{e\mathbf{k}'} = \sum_{\mathbf{k}'\mathbf{s}'} n_{h,-\mathbf{k}'} \quad (3.31)$$

gilt, trägt der gesamte Hartree-Term in Gleichung (3.28) nicht bei. In einem räumlich inhomogenen System, in dem lokal die Ladungsträgerneutralität aufgehoben ist, treten aber Hartree-Beiträge zur Selbstenergie auf (vgl. Abschnitt 10.1).

Der zweite Selbstenergiebeitrag in Gleichung (3.28) ist die Austausch- oder Fock-Selbstenergie Σ^F . Dieser Ausdruck stellt die Absenkung der Energie eines Elektrons aufgrund des Pauliprinzips dar. Da sich in einem Quantenzustand nicht mehr als ein Fermiteilchen aufhalten darf, müssen Teilchen gleichen Spins ($\delta_{ss'}$ in Glg. (3.28)) einander ausweichen. Hierdurch ist die Wahrscheinlichkeit, daß sich in der unmittelbaren Umgebung eines Elektrons weitere Elektronen derselben Spinrichtung befinden, herabgesetzt. Bei diesem Effekt spricht man von der Ausbildung eines sogenannten Austauschloches um ein Elektron. Da sich also die Teilchen gleichen Spins im Mittel weniger nahe kommen, ist der Erwartungswert der Coulombenergie vermindert. Graphisch wird die Austauschselbstenergie dargestellt durch das Diagramm

(3.32)

Der Austauschterm in Gleichung (3.28) enthält für die Valenzbandenergien ($\rho=v$) wieder die bereits berücksichtigte Wechselwirkung mit dem vollen Valenzband. Das ist der Zusatzterm, der beim Übergang in das Lochbild gemäß

$$-\sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} n_{v\mathbf{k}'} = -\sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} (1 - n_{h,-\mathbf{k}'}) \quad (3.33)$$

entsteht (der Term $\propto 1$). Für die Löcher resultiert also wie für die Elektronen eine Energieabsenkung, was im Teilchenbild eine Verminderung der Energielücke E_g bedeutet. Die Verminderung der Energielücke durch optisch erzeugte Ladungsträger ist ein wichtiger nichtlinearer optischer Effekt, der noch genauer erläutert werden wird, sobald eine vollständige Theorie der Einteilchenselbstenergie zur Verfügung steht.

In der Hartree-Fock-Approximation wird das Coulombpotential der Ladungsträger durch ein gemittelttes Potential ersetzt. Es zeigt sich aber, daß durch die Abweichungen der lokalen Felder vom mittleren Feld erhebliche Reaktionen der Ladungsträger hervorgerufen werden. Dies trifft besonders für freie Ladungsträger zu. Es ist deshalb eine wichtige Aufgabe der Vielteilchentheorie, Korrelationsbeiträge zu den Einteilchenselbstenergien (3.28) zu berechnen. In Verallgemeinerung von Gleichung (3.28) schreibt man

$$\Sigma = \Sigma^{\text{HF}} + \Sigma^{\text{C}}. \quad (3.34)$$

Hierin ist Σ^{C} die sogenannte Korrelationsselbstenergie, die in den Abschnitten 6.6 und 10.2 näherungsweise bestimmt werden wird. Sehr wichtig hierfür ist das Konzept der Abschirmung, im Rahmen dessen an die Stelle des nackten Coulombpotentials V ein

abgeschirmtes, retardiertes Potential V_s tritt.

3.5 Die Wanniergleichung und die lineare optische Suszeptibilität

Es soll nun die Diskussion der Gleichung der optischen Polarisation, Glg. (3.26), fortgesetzt werden. Auf der rechten Seite dieser Gleichung tritt neben dem Beitrag μE_0 des Laserfeldes das innere Feld $\sum V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'}$ auf. Dieser Term rührt von der anziehenden Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern her. Ohne diesen Term wäre Gleichung (3.26) einfach zu lösen, denn dann bestünde keine Kopplung zwischen den optischen Dipolen $p_{\mathbf{k}}$. Die Diskussion der Polarisationsgleichung ohne die Elektron-Loch-Korrelation führt auf das sogenannte 'Spektrum der freien Teilchen' (s. Glg. (3.63) und Fig. 3.1). Es verhält sich jedoch so, daß die optische Polarisation unkorrelierter Elektronen und Löcher zwar als Rechengröße auftritt, aber keine eigene physikalische Bedeutung besitzt. Tatsächlich kann die Elektron-Loch-Wechselwirkung praktisch niemals als kleine Störung betrachtet oder gar vernachlässigt werden.

Gleichung (3.26) ist eine Integralgleichung für die Größen $p_{\mathbf{k}}$, die auch unter Kenntnis der Verteilungsfunktionen $n_{\mathbf{k}}$ der Ladungsträger im allgemeinen nicht analytisch lösbar ist. Nur in linearer Näherung bezüglich der Laserfeldstärke und für einen Halbleiter, der sich im Grundzustand befindet, läßt sich die Lösung analytisch angeben. Zunächst soll gezeigt werden, daß die Hartree-Fock-Approximation (3.25) in diesem Fall exakt ist. Da eine schwache Anregung des Kristalls betrachtet wird, also die Absorption von nicht mehr als einem Photon, läßt sich sagen, daß der Zustand $|\Phi\rangle$ des Systems eine gewisse Überlagerung von Zuständen

$$|k_e s_e, k_h s_h\rangle = a_{e, k_e s_e}^+ a_{h, k_h s_h}^+ |0\rangle \quad (3.35)$$

sein wird, in denen ein Elektron und ein Loch vorhanden ist ($|0\rangle$ bezeichnet den Vakuumzustand). Deshalb sollen jetzt im Erwartungswert auf der linken Seite von Gleichung (3.25) durch Anwendung der Vertauschungsrelationen (1.16) Vernichtungsoperatoren von Elektronen und Löchern nach rechts gebracht werden. Wirkt dann mehr als ein Vernichtungsoperator einer Teilchensorte auf den Zustand $|\Phi\rangle$ des Systems, so verschwindet der betreffende Term nach Gleichung (3.35). Das Ergebnis ist

$$\langle a_{v, \mathbf{k}+\mathbf{q}, s}^+ a_{c, \mathbf{k}'-\mathbf{q}, s'}^+ a_{c, \mathbf{k}' s'} a_{v, \mathbf{k} s} \rangle = \delta_{\mathbf{q}, 0} \delta_{s'v} p_{\mathbf{k}} - \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'-\mathbf{q}} \delta_{s'c} \delta_{sv} p_{\mathbf{k}}, \quad (3.36)$$

also genau Gleichung (3.25) für $n_{e\mathbf{k}} = n_{h\mathbf{k}} = 0$.

Die Polarisationsgleichung (3.26) wird für verschwindende Teilchendichten $n_{e\mathbf{k}}$ und $n_{h\mathbf{k}}$ zu

$$i\dot{p}_{\mathbf{k}} = \sum_{\mathbf{k}'} H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'} - \mu_{\mathbf{k}} E_0(t) \quad (3.37)$$

mit der Hamiltonfunktion

$$H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'} = \left(E_g + \frac{k^2}{2m} \right) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}. \quad (3.38)$$

Die Größe $H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'}$, Glg. (3.38), ist formal identisch mit dem Hamiltonoperator der Relativbewegung von Elektron und Proton im Wasserstoffproblem. Man hat hier lediglich eine andere reduzierte Masse einzusetzen und die Coulombanziehung V_0 durch die dielektrische Konstante ϵ_0 zu dividieren. Im vorliegenden Fall tritt keine Schwerpunktsbewegung auf, da optisch erzeugte Elektron-Loch-Paare den Impuls des Photons tragen, der hier jedoch vernachlässigt wurde. Ohne das Laserfeld E_0 als treibenden Term erfüllt die optische Polarisation nach Gleichung (3.37) die Schrödingergleichung

$$i\dot{\phi}_{\mathbf{k}} = \sum_{\mathbf{k}'} H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{k}'}, \quad (3.39)$$

bzw. im Ortsraum

$$i\dot{\phi}(\mathbf{r},t) = H_0(\mathbf{r}) \phi(\mathbf{r},t) \quad (3.40)$$

mit dem Hamiltonoperator

$$H_0(\mathbf{r}) = E_g - \frac{\nabla^2}{2m} - V(\mathbf{r}). \quad (3.41)$$

Gleichung (3.40) ist der Spezialfall der Wanniergleichung für verschwindende Schwerpunktsbewegung [12, Glg. (3.137)]. Die stationären Lösungen der Wanniergleichung sind die wasserstoffartigen Exzitonwellenfunktionen ϕ_n . Dabei repräsentiert der Index n die Haupt- und die Nebenquantenzahl sowie die magnetische Quantenzahl. In Gleichung (2.11) wurde der Bohrsche Radius a_0 von Wannier-Exzitonen angegeben, der in der Regel sehr viel größer ist als der Bohrsche Radius von Wasserstoffatomen. Entsprechend klein ist die Bindungsenergie $E_b = 1/2ma_0^2$ von Wannier-Exzitonen. Für Galliumarsenid

beispielsweise ist $a_0 \approx 10^{-6} \text{ cm}$ und $E_0 \approx 5 \text{ meV}$.

Da die Lösungen ϕ_{nk} der zur Polarisationsgleichung (3.37) gehörigen homogenen Integralgleichung (3.39) bekannt sind, läßt sich Gleichung (3.37) durch die Entwicklung der optischen Polarisation p_k nach diesen Funktionen lösen. Sei

$$p_k = \sum_n \langle k|n \rangle p_n. \quad (3.42)$$

Aus Gleichung (3.37) und der Entwicklung (3.42) folgt dann für die Koeffizienten p_n

$$i\dot{p}_n = \omega_n p_n - \mu_n E_0(t). \quad (3.43)$$

Durch die Transformation $k \rightarrow n$ wurde eine Entkopplung in voneinander unabhängige Oszillatoren p_n erreicht. Die Exzitonenergien ω_n sind gegeben durch

$$\omega_n = E_g + E_n. \quad (3.44)$$

Die Energien E_n hängen nur von der Hauptquantenzahl ab. Für gebundene Zustände sei die Hauptquantenzahl mit der natürlichen Zahl $\nu=1,2,\dots$ bezeichnet, und für die Zustände des Streukontinuums mit der kontinuierlichen Impulsquantenzahl p . Es gilt

$$E_\nu = -\frac{E_0}{\nu^2} \quad (3.45a)$$

für gebundene Zustände und

$$E_p = \frac{p^2}{2m} \quad (3.45b)$$

für Streuzustände. Die Größe μ_n in Gleichung (3.43) ist das optische Matrixelement für die Erzeugung eines Exzitons der Quantenzahl n :

$$\mu_n = \sum_k \langle n|k \rangle \mu_k. \quad (3.46)$$

Aus Gleichung (3.43) erhält man für die optische Polarisation durch Fouriertransformation $t \rightarrow \omega$ die retardierte Lösung

$$p_n(\omega) = -\mu_n E_0(\omega) G_{0,n}^r(\omega) \quad (3.47)$$

mit der retardierten Greenschen Funktion freier Exzitonen

$$G_{0,n}^r(\omega) = \frac{1}{\omega - \omega_n + i\delta} \quad (3.48)$$

Hierin ist $\delta=0^+$ eine infinitesimale positive Größe, die die Kausalität der Lösung (3.47) sicherstellt. Auch bei endlicher Anregungsdichte ist die optische Polarisation, solange Exzitonen im System stabil sind, durch die Greenschen Funktionen der Exzitonen bestimmt. Allerdings treten dann Renormierungen in diesen Funktionen auf (vgl. Glg. (9.79)). Um die makroskopische optische Polarisation P , Glg. (3.2), zu erhalten, hat man die Rücktransformation (3.42) auszuführen. Für die Größe p_k erhält man die kohärente Überlagerung

$$p_k(\omega) = - \sum_n \langle k|n \rangle \mu_n E_0(\omega) G_{0,n}^r(\omega). \quad (3.49)$$

Damit ergibt sich für die Polarisation P

$$P(\omega) = \chi(\omega) E_0(\omega) \quad (3.50)$$

mit der linearen optischen Suszeptibilität

$$\chi(\omega) = \frac{2}{V} \sum_n \frac{|\mu_n|^2}{\omega_n - \omega - i\delta} \quad (3.51)$$

Gleichung (3.51) ist die bekannte Elliott-Formel für die optische Suszeptibilität eines direkten Halbleiters [12, §3.3]. Mit der optischen Suszeptibilität läßt sich die transversale dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$ bilden gemäß

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + 4\pi \chi(\omega). \quad (3.52)$$

Brechungsindex $n(\omega)$ und Absorptionskoeffizient $\alpha(\omega)$ hängen mit der optischen dielektrischen Funktion (3.52) zusammen gemäß

$$n(\omega) = \text{Re} \sqrt{\epsilon(\omega)} = \sqrt{[\text{Re} \epsilon(\omega) + |\epsilon(\omega)|]/2}, \quad (3.53)$$

$$\alpha(\omega) = \frac{2\omega}{c} \text{Im} \sqrt{\epsilon(\omega)} = \frac{\omega}{n(\omega) c} \text{Im} \epsilon(\omega). \quad (3.54)$$

Vor der weiteren Diskussion der Elliott-Formel (3.51) soll eine wesentliche Vereinfachung vorgenommen werden, die sich aus der näheren Betrachtung des optischen Matrixelementes μ_n , Glg. (3.46), ergibt. Vernachlässigt man nämlich für den Augenblick die schwache k -Abhängigkeit der Größe μ_k , Glg. (2.65a), so ergibt sich

$$\mu_n \approx \sqrt{V} \phi_n^*(r=0) \mu_0. \quad (3.55)$$

Die Vernachlässigung der k -Abhängigkeit des Matrixelementes μ_k bedeutet gemäß Gleichung (2.64), daß Elektron und Loch in derselben Gitterzelle erzeugt bzw. vernichtet werden. Deshalb ist in dieser Näherung das Matrixelement μ_n für die Erzeugung von Exzitonen proportional zur Wahrscheinlichkeitsamplitude $\phi_n^*(r=0)$, Elektron und Loch in derselben Gitterzelle zu finden. Die Größe $\phi_n(r=0)$ verschwindet für Zustände mit endlichem Bahndrehimpuls [2, S. 165]. In der Näherung (3.55) ergibt sich somit die wesentliche Erleichterung, daß die Summe in Gleichung (3.49) nur über s -Wellen zu erstrecken ist. Der Index n repräsentiert in diesem Fall also nur die Hauptquantenzahl. Aus Gleichung (3.49) wird dann

$$p_k(\omega) = -\mu_0 E_0(\omega) G^r(k, r'=0, \omega) \quad (3.56)$$

mit der retardierten Coulomb-Greensfunktion

$$G^r(r, r', \omega) = \sum_n \frac{\phi_n(r) \phi_n^*(r')}{\omega - \omega_n + i\delta}. \quad (3.57)$$

Die Coulomb-Greensfunktion (3.57) spielt in störungstheoretischen Berechnungen eine wichtige Rolle (s. Abschnitt 9.2.4 und 9.2.5). Von Zimmermann wurden nützliche Integralformeln für diese Funktion angegeben [20]. Die Wahrscheinlichkeitsdichte für den Aufenthalt von Elektron und Loch am Ursprung der Relativbewegung ist für gebundene

Zustände gegeben durch

$$|\phi_{\nu}(r=0)|^2 = \frac{1}{\pi(\nu a_0)^3}. \quad (3.58a)$$

Für die Streuzustände gilt

$$|\phi_p(r=0)|^2 = \frac{1}{V} \frac{2\pi}{a_0 p} \frac{1}{1 - e^{-2\pi/a_0 p}}. \quad (3.58b)$$

In Streuzuständen mit großen Relativimpulsen p verhalten sich Elektron und Loch wie unkorrelierte Teilchen. In diesem Grenzfall strebt die Wahrscheinlichkeitsdichte (3.58b) gegen den Wert $1/V$. Hieraus wird ersichtlich, daß sich die Näherung (3.55) für das Matricelement μ_n nicht in der optischen Suszeptibilität, Glg. (3.51), verwenden läßt, da dieser Ausdruck dann divergiert. Bei Berücksichtigung der k -Abhängigkeit des Matricelementes μ_k dagegen ergibt sich ein endlicher Ausdruck, da

$$\mu_p \rightarrow \mu_{k=p} \quad (3.59)$$

für $p \rightarrow \infty$.

Obwohl die Näherung (3.55) also nicht immer verwendbar ist, soll dennoch angenommen werden, daß die wichtigsten Beiträge zur optischen Suszeptibilität (3.51) von s -Wellen herrühren. Deshalb sollen auch weiterhin generell die Beiträge von Zuständen mit endlichem Bahndrehimpuls vernachlässigt werden. In dieser Näherung hängt die optische Polarisation p_k nur vom Betrag des Wellenvektors k ab.

Die Diskussion der Elliott-Formel (3.51) sei hier beschränkt auf den Imaginärteil der optischen Suszeptibilität, der nach Gleichung (3.54) proportional zum Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$ ist. Zur Auswertung benötigt man die Dirac-Identität

$$\frac{1}{x + i\delta} = \frac{P}{x} - i\pi \delta(x). \quad (3.60)$$

Hierin bezeichnet

$$\frac{P}{x} = \left[\frac{x}{x^2 + \gamma^2} \right]_{\gamma \rightarrow 0} \quad (3.61)$$

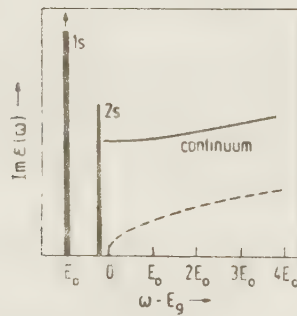
den sogenannten Hauptwert des Ausdrucks (3.60). Mit Gleichung (3.60) ergibt sich für den Imaginärteil der optischen Suszeptibilität (3.51)

$$\text{Im } \chi(\omega) = 2\pi |\mu_0|^2 \sum_n |\phi_n(r=0)|^2 \delta(\omega - \omega_n). \quad (3.62)$$

Hierbei war es möglich, die Näherung (3.55) zu verwenden, da die Integration in Gleichung (3.62) auf die Energieschale $\omega_p = \omega$ beschränkt ist. Das Ergebnis (3.62) ist in Figur 3.1 gezeigt [12, §3.3]. Gestrichelt eingezeichnet ist zum Vergleich das Absorptionsspektrum 'freier Teilchen'

$$\text{Im } \chi_0(\omega) = 2\pi |\mu_0|^2 \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \delta(\omega - E_g - k^2/2m), \quad (3.63)$$

das sich unter Vernachlässigung der Elektron-Loch-Anziehung ergibt.



Figur 3.1. Das Exzitonspektrum (entnommen aus [12]).

Es bestehen bedeutende Unterschiede zwischen dem Exziton-Spektrum (3.62) und dem Spektrum (3.63) unkorrelierter Elektronen und Löcher:

Unterhalb der Bandkante E_g verschwindet das Absorptionsspektrum unkorrelierter Elektronen und Löcher, da die Energie E_g die Mindestenergie eines solchen Elektron-Loch-Paares ist. Das Elliott-Spektrum dagegen weist unterhalb der Bandkante die diskreten Absorptionslinien der gebundenen Exzitonzustände auf. Da bisher keine Verbreiterungsmechanismen berücksichtigt wurden, ist das Spektrum in diesem Frequenzbereich singulär. Die einfachste Art, dies zu beheben, besteht darin, die Deltafunktionen in Gleichung (3.62) zu 'verbreitern' gemäß

$$\pi \delta(\omega - \omega_n) \rightarrow \frac{\gamma_n}{(\omega - \omega_n)^2 + \gamma_n^2}, \quad (3.64)$$

wobei die Größe $\gamma_n = 1/\tau_n$ das Inverse einer mittleren Stoßzeit ist. Experimentell beobachtet man jedoch eine von der einfachen Lorentzform (3.64) abweichende Form der Exzitonresonanz. Im niederenergetischen Ausläufer klingt die Exzitonlinie nach der Martienssen-Urbach-Regel exponentiell ab [21]. Zur Beschreibung dieses Verhaltens ist die Berechnung einer frequenzabhängigen Dämpfungskonstanten $\gamma_n(\omega)$ notwendig.

Liegt die Laserfrequenz oberhalb der Bandlücke E_g , so werden Elektron-Loch-Paare in exzitonischen Streuzuständen erzeugt. Auch in diesem Energiebereich besteht ein beträchtlicher Unterschied zwischen dem Absorptionsspektrum unkorrelierter Elektronen und Löcher und dem Exzitonspektrum. Zwar bilden Elektron und Loch für $\omega_n > E_g$ keinen gebundenen Zustand mehr, aber dennoch ist die Wahrscheinlichkeitsdichte (3.58b), die beiden Teilchen in derselben Gitterzelle zu finden, aufgrund der Coulombanziehung wesentlich erhöht gegenüber dem Faktor $1/V$ unkorrelierter Teilchen. Entsprechend verstärkt ist nach Gleichung (3.62) auch die optische Oszillatorstärke.

Nach Ausführung der k -Integration erhält man aus Gleichung (3.63) für das Spektrum unkorrelierter Elektronen und Löcher die Formel

$$\text{Im } \chi_0(\omega) = \frac{|\mu_0|^2 (2m)^{3/2}}{2\pi} \sqrt{\omega - E_g}. \quad (3.65)$$

Für das Exzitonspektrum (3.62) dagegen ergibt sich oberhalb der Bandkante

$$\text{Im } \chi(\omega) = E(\omega) \text{ Im } \chi_0(\omega), \quad (3.66)$$

wobei die Größe

$$E(\omega) = V |\phi_p(r=0)|^2 \quad (3.67)$$

$$\text{mit } p = \sqrt{2m(\omega - E_g)},$$

die die Überhöhung des Exzitonspektrums gegenüber dem Spektrum unkorrelierter Elektronen und Löcher angibt, der sogenannte Faktor der exzitonischen Verstärkung ist. Eine Besonderheit des Elliott-Spektrums (3.66) ist, daß sich an der Bandkante ($\omega=E_g$) ein endlicher Wert einstellt. Mit Hilfe von Gleichung (2.63) ergibt sich

$$\text{Im } \chi(\omega=E_g) = \epsilon_0 \frac{E_0}{E_g}. \quad (3.68)$$

Aufgrund der endlichen Breite der Exzitonlinien wird experimentell in der Regel nur die 1s-Resonanz und eventuell die 2s-Resonanz spektral aufgelöst. An der Bandkante geht die Absorption stetig in die Kontinuumsabsorption über. Aus diesem Grund läßt sich die Energie E_g der Bandlücke auf optischem Wege nicht exakt ermitteln.

4. ZUSTANDSFORMEN OPTISCH ERZEUGTER ELEKTRON-LOCH-PAARE

Mit der Kenntnis der linearen optischen Suszeptibilität eines Halbleiters, Glg. (3.51), ist ein günstiger Ausgangspunkt zur Diskussion von Hochanregungseffekten erreicht. In diesem Kapitel wird eine Schilderung der unterschiedlichen Zustände gegeben, in denen sich optisch erzeugte Elektron-Loch-Paare im Halbleiter befinden können. Hieraus ergeben sich Anhaltspunkte für die erforderlichen Erweiterungen der Theorie.

Die nichtlinearen optischen Spektren zeigen eine starke Abhängigkeit von der Dichte und von der energetischen Verteilung der erzeugten Ladungsträger. Diese Größen sind bestimmt durch die Frequenz, durch die Intensität und durch die Dauer des anregenden Laserstrahls. Eine ebenfalls wichtige Rolle spielt die Temperatur des Kristalls, die die mittlere Zahl der thermisch angeregten Phononen bestimmt. Zur Klassifizierung der unterschiedlichen Anregungsformen von Elektron-Loch-Paaren ist zunächst die Frequenz des anregenden Laserstrahls die entscheidende Größe. Man wird auf die wichtige Unterscheidung zwischen virtuellen und reellen optischen Anregungen geführt. In Abschnitt 4.1 werden die wesentlichen Unterschiede zwischen diesen beiden Anregungsformen diskutiert. Die verbleibenden Abschnitte dieses Kapitels geben eine Schilderung der verschiedenen Zustandsformen und der optischen Eigenschaften reeller Elektron-Loch-Paare. Auf die physikalischen Eigenschaften virtueller Ladungsträger und auf die Wirkung dieser Anregungen auf die optischen Spektren eines Halbleiters wird in den Kapiteln 9 und 10 eingegangen.

4.1 Virtuelle und reelle optische Anregungen

i) Nichtresonante Anregung, die Erzeugung virtueller Elektron-Loch-Paare

Im vorangegangenen Abschnitt wurde gezeigt, daß ein Halbleiter, der sich im Grundzustand befindet, unterhalb der Resonanz des 1s-Exzitons transparent ist. Die Energie eines Photons reicht in diesem Fall nicht aus, um ein Elektron-Loch-Paar dauerhaft zu erzeugen. Das bedeutet aber nicht, daß in diesem Frequenzbereich keine Wechselwirkung zwischen Licht und Materie stattfindet. Dies erkennt man daran, daß der Realteil der optischen Suszeptibilität (3.51) auch unterhalb der Bandkante von Null verschieden ist. Hieraus resultiert gemäß Gleichung (3.53) eine Veränderung des Brechungsindex des Kristalls. Reicht die Energie der Lichtquanten nicht aus, um den Halbleiter aus seinem Grundzustand in einen angeregten Eigenzustand zu versetzen, so werden die Photonen nur kurzzeitig, man sagt 'virtuell' (englisch: virtual = beinahe, fast) absorbiert und sogleich wieder emittiert. Dies ist die quantenoptische Beschreibung der gekoppelten Schwingung zwischen dem Laserfeld und der elektronischen Polarisation. Ein virtueller Übergang ist also ein ganz gewöhnlicher Vorgang. Die Bezeichnung 'virtuell' steht nicht im Gegensatz zu real. Der Halbleiter wird durch die Bestrahlung im

Transparenzgebiet in eine kohärente Überlagerung aus seinem Grundzustand und seinen angeregten Zuständen versetzt. Zu dieser Überlagerung tragen, wie die Gleichung (3.49) der optischen Polarisation p_k zeigt, alle möglichen Zustände $|n\rangle$ eines Elektron-Loch-Paares bei. Da sich die Frequenz des Laserfeldes von den Eigenenergien dieser Zustände unterscheidet, spricht man hierbei von nichtresonanter Anregung.

ii) Resonante Anregung: die Erzeugung reeller Elektron-Loch-Paare

Nähert sich die Frequenz des treibenden Feldes der ersten Exzitonlinie, so tritt das Laserfeld in Resonanz mit der optischen Polarisation. Die optische Suszeptibilität (3.51) beginnt dann zu divergieren, da bisher noch keine Dämpfungsprozesse berücksichtigt wurden. Diese Divergenz signalisiert den Kollaps des Systems in einen neuen Zustand. Die Energie der Photonen reicht nun aus, um Exzitonen dauerhaft zu erzeugen. Bei der reellen Absorption eines Lichtquants wird der Halbleiter aus seinem Grundzustand in seinen ersten optischen Anregungszustand versetzt. Im Unterschied zur virtuellen Anregung ist also bei der reellen Absorption der angeregte Zustand wieder ein Eigenzustand des Kristalls. Ein reeller Absorptionsvorgang ist mit dem Auftreten eines nichtverschwindenden Imaginärteils (3.62) der optischen Suszeptibilität verknüpft. Hieraus resultiert nach Gleichung (3.54) der Absorptionskoeffizient des Kristalls. Die δ -Funktion in Gleichung (3.62) gibt wieder, daß reelle Absorption unter Energieerhaltung abläuft.

Die Dirac-Identität, Glg. (3.60), zeigt, daß Resonanzen im Absorptionsspektrum auch immer mit dispersiven Resonanzen einhergehen. Es handelt sich ja auch physikalisch gesehen um einen stetigen Übergang zwischen virtueller und reeller Absorption. Dennoch bestehen entscheidende Unterschiede zwischen beiden Anregungsformen: Virtuelle Elektron-Loch-Paare sind mit der optischen Polarisation verknüpft und verschwinden, sobald das treibende Laserfeld abklingt. Der Halbleiter kehrt dann im Idealfall in seinen Grundzustand zurück. Man spricht in diesem Fall auch von einer transienten (vorübergehenden) Anregung. Bei reeller Absorption dagegen können die erzeugten Anregungen nach dem Abklingen des Laserpulses im System verbleiben. Sie zerfallen dann erst gemäß ihrer natürlichen Lebensdauer aufgrund spontaner Emission von Photonen oder aufgrund nichtstrahlender Rekombination an Störstellen. Diese Rekombinationszeiten liegen im Nanosekunden- oder im Subnanosekundenbereich ($\approx 10^{-10}$ sec). Im Vergleich zur Pulsdauer moderner Laserapparaturen, die im Subpikosekundenbereich ($\approx 10^{-14}$ – 10^{-12} sec) liegen kann [22], ist dies eine relativ lange Zeit. Reelle Elektron-Loch-Paare liefern daher bedeutend langsamere optische Nichtlinearitäten als virtuelle Anregungen. Andererseits erweisen sich die Nichtlinearitäten aufgrund reeller Ladungsträger als ausgeprägter.

Die optischen Eigenschaften von Halbleitern, in denen reelle Ladungsträger angeregt sind, werden schon seit geraumer Zeit intensiv studiert. Die Bedeutung virtueller Anregungen dagegen erkannte man erst in den letzten Jahren, als man begann, auch im Halbleiter nach kohärenten optischen Effekten zu suchen, wie sie aus der Atomphysik bekannt sind. Lange Zeit hatte man hierzu wenig Anlaß gesehen, da mit der Pulsdauer der zur Verfügung stehenden Laserapparaturen die Kohärenzzeit der optischen Polarisation in resonant angeregten Halbleitern nicht unterschritten werden konnte. Bei Elektron-Loch-Paaren in Halbleitern handelt es sich um räumlich ausgedehnte Gebilde. Bereits der

Bohrscher Radius (2.11) eines gebundenen Elektron-Loch-Paares ist viel größer als die Gitterkonstante des Kristalls. Aufgrund ihrer Größe sind solche Gebilde in viel stärkerem Maße inkohärenten Streuprozessen ausgesetzt als etwa die lokalisierten Elektronen von Atomen in gasförmigen Substanzen. Ladungsträger in Halbleitern streuen untereinander und mit Phononen, sowie an Gitterfehlstellen, an Fremdatomen und an Oberflächenrauigkeiten. Typischerweise findet man mittlere Stoßzeiten in der Größenordnung von Bruchteilen einer Pikosekunde. Da die Stoßprozesse der Ladungsträger die Kohärenz von optischen Polarisationschwingungen zerstören, stellt die mittlere Stoßzeit die Relaxationszeit der optischen Polarisation dar. Mit der Entwicklung von Laserapparaturen, deren Pulsdauer im Subpikosekundenbereich liegt, können diese Zeiten inzwischen erreicht und unterschritten werden. Dennoch ist es bis heute schwer, kohärente optische Effekte im Halbleiter bei resonanter Anregung experimentell nachzuweisen. Eine bekannte theoretische Vorhersage beispielsweise ist das Aufspalten der Energiebänder der Blochelektronen unter dem Einfluß eines intensiven kohärenten elektromagnetischen Feldes [23]. Dies ist der resonante optische Stark-Effekt. Aufgrund der großen Stoßverbreiterung der Blochzustände läßt sich dieser Effekt mit Nanosekunden-Laserpulsen nicht deutlich beobachten. Aber auch bei der Verwendung von Femtosekunden-Laserpulsen ist dieser Effekt bis heute nicht nachgewiesen worden, vermutlich deshalb, weil mit der kurzen Pulsdauer auch eine gewisse spektrale Verbreiterung der optischen Resonanzen einhergeht (s. Abschnitt 9.3). Hierin liegt die Bedeutung der nichtresonanten Anregung. Es zeigt sich (s. Kapitel 10), daß virtuelle Elektron-Loch-Paare aufgrund der Energielücke zwischen der Frequenz des Laserstrahls und den Energien reeller Elektron-Loch-Paare nur bedingt an Streuprozessen teilnehmen können. Deshalb ist die Phasenkohärenzzeit der optischen Polarisation bei nichtresonanter Anregung wesentlich erhöht. An virtuellen Elektron-Loch-Paaren gelang 1986 erstmals der experimentelle Nachweis des optischen Stark-Effektes in Halbleitern [24-26]. Hierbei wurden sehr kurze Laserpulse mit einer Dauer in der Größenordnung von 100 Femtosekunden verwendet. Neueste Messungen [27] zeigen, daß der optische Stark-Effekt an virtuellen Elektron-Loch-Paaren aufgrund der erhöhten Phasenkohärenzzeit bei nichtresonanter Anregung sogar mit Nanosekunden-Laserpulsen beobachtbar ist. Eine theoretische Beschreibung des exzitonischen optischen Stark-Effektes wird in Kapitel 9 gegeben.

Virtuelle Elektron-Loch-Paare sind aufgrund der Energielücke zwischen der Frequenz des Laserstrahls und den Energien reeller Zustände sehr eingeschränkt in ihrer Fähigkeit, an Wechselwirkungsprozessen teilzunehmen. Die physikalischen Eigenschaften virtueller Ladungsträger und die Auswirkungen dieser Anregungen auf die optischen Spektren eines Halbleiters werden in den Kapiteln 9 und 10 behandelt. Reell erzeugte Ladungsträger können sich in einer Vielzahl unterschiedlicher Zustände befinden. Die folgenden Abschnitte geben einen kurzen Überblick über die verschiedenen Zustandsformen und die optischen Eigenschaften reeller Elektron-Loch-Paare.

4.2 Optische Anregung reeller Elektron-Loch-Paare

Die nichtlinearen optischen Spektren, die mit Pump- und Testfeld aufgenommen werden,

unterscheiden sich voneinander. Der Pumpstrahl treibt eine endliche optische Polarisation P im System und erzeugt eine endliche Dichte von Ladungsträgern. Bei Anregung im Frequenzbereich der Exzitonlinien entstehen gebundene Elektron-Loch-Paare. Bei Anregung oberhalb der Bandkante werden freie Ladungsträger (genauer: Elektron-Loch-Paare in exzitonischen Streuzuständen) erzeugt. Die Kenntnis der optischen Suszeptibilität $\chi_p = P/E_p$ ermöglicht die Berechnung der Polarisation P und des Absorptionskoeffizienten α_p des Pumpstrahles, mit dessen Hilfe auch die Dichte der erzeugten Ladungsträger angegeben werden kann. Ein zusätzliches schwaches Testfeld $\delta E = E_t$ bewirkt im vom Pumpfeld angeregten System eine zusätzliche optische Polarisation δP . Die lineare Suszeptibilität $\chi_t = \delta P / \delta E$ liefert den Absorptionskoeffizienten und den Brechungsindex des angeregten Systems. Die Größe χ_t hängt von der vom Pumpfeld induzierten optischen Polarisation und von der Ladungsträgerdichte ab. Einer der Unterschiede zwischen den Spektren, die mit Pump- und Testfeld aufgenommen werden können, besteht darin, daß der Pumpstrahl durch Absorption geschwächt wird, während für den Teststrahl auch optische Verstärkung durch stimulierte Emission von Photonen möglich ist (s. Abschnitt 7.6). Bei resonanter Anregung des Systems sind zwei verschiedene Situationen denkbar:

i) Der Pumpstrahl ist bereits wieder abgeklungen

Durch die resonante Anregung hat der Pumpstrahl reelle Elektron-Loch-Paare im System hinterlassen, deren Auswirkungen auf die optischen Spektren eines Teststrahles nun detektiert werden können. Aufgrund der vielfältigen phasenzerstörenden Prozesse im Halbleiter kann in diesem Fall angenommen werden, daß innerhalb kurzer Zeit nach dem Abklingen des externen Feldes auch die optische Polarisation und das von ihr hervorgerufene Feld verklungen sind. Dann hängen die Teststrahlspektren nur noch von der räumlichen und von der energetischen Verteilung der erzeugten Ladungsträger ab. Es spielt in diesem Fall keine Rolle mehr, daß der Halbleiter auf optischem Wege angeregt wurde. Die Anregung könnte ebenso gut auf elektronischem Weg erfolgt sein [28, S. 374]. Experimentell läßt sich in dieser Situation zeitaufgelöst die Änderung der optischen Spektren während der Relaxation der Ladungsträger beobachten. Da die Lebensdauer optischer Anregungen zumeist groß ist gegen die typischen Streuzeiten der Ladungsträger, findet die Relaxation in mehreren Stufen statt. Zunächst stellt sich auf der Zeitskala der Streuzeiten näherungsweise ein thermodynamischer Gleichgewichtszustand unter den Ladungsträgern ein. Erst auf der größeren Zeitskala, die durch die Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare gegeben ist, erfolgt die Rückkehr in den Grundzustand des Kristalls.

Oftmals ist es berechtigt, anzunehmen, daß sich aufgrund der raschen Coulombstreuung der Ladungsträger bereits ein Gleichgewichtszustand unter den Elektron-Loch-Paaren, bzw., im Falle freier Ladungsträger, innerhalb der Teilsysteme von Elektronen und Löchern, gebildet hat. Man kann den Ladungsträgern dann Temperaturen zuordnen und die Angleichung dieser Temperaturen an die Temperatur des Kristallgitters verfolgen [29]. Die Berechnung der optischen Spektren erfolgt in diesem Fall unter der Verwendung von Gleichgewichtsverteilungen, wobei die Temperaturen und die Ladungsträgerdichte als Parameter auftreten. Während der Veränderung der Temperatur und der Teilchendichte durchlaufen die Ladungsträger ganz unterschiedliche Zustandsformen, was erhebliche Veränderungen in den optischen Spektren zur Folge hat (s. Abschnitt 4.3).

ii) Das System befindet sich noch unter dem Einfluß des Pumpfeldes

In vielen Fällen interessiert man sich für den Einfluß der nichtlinearen Reaktion des Systems auf den anregenden Strahl selbst. Ein interessanter dispersiver nichtlinearer Effekt, also ein Effekt, der auf einer Änderung des Brechungsindex beruht, ist beispielsweise die Selbstfokussierung bzw. die Selbstdefokussierung eines Lichtstrahls bei der Propagation durch ein nichtlineares Medium [30, §17]. Andere nichtlineare Phänomene sind auf die Änderung des Absorptionskoeffizienten des Kristalls bei intensiver Anregung zurückzuführen. Beispielsweise ist es möglich, daß sich der Absorptionskoeffizient eines Halbleiters infolge der Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren erhöht (induzierte Absorption) [31]. Auch der umgekehrte Effekt tritt auf, bei dem ein Lichtpuls einen Kristall lokal ausbleicht und für sich selbst transparent macht (selbstinduzierte Transparenz) [30, §21.6]. Absorptive und dispersive optische Nichtlinearitäten können zu dem technologisch interessanten Phänomen der optischen Bistabilität führen [32]. In einer optisch bistabilen Anordnung findet man in einem gewissen Wertebereich zu einer Intensität des externen Laserfeldes zwei mögliche stabile Zustände des Systems, die unterschiedliche Transmissionskoeffizienten aufweisen. Auf diese Weise ist ein optisches Schaltelement realisierbar. Für das Auftreten dispersiver optischer Bistabilität ist es erforderlich, daß der Kristall für das Lichtfeld als Fabry-Perot-Resonator wirkt, oder daß sich der Kristall in einem externen Resonator befindet. Der Effekt der induzierten Absorption dagegen ermöglicht auch optisch bistabiles Verhalten ohne optische Rückkopplung. Man spricht dann von intrinsischer optischer Bistabilität [31]. Dieses Phänomen wird in Abschnitt 4.4 erläutert.

Die soeben geschilderten Effekte werden in der Regel ebenfalls unter den in i) beschriebenen Gleichgewichtsannahmen diskutiert. In den zugehörigen Rechnungen hängt die Dichte der Ladungsträger von der Intensität des Laserfeldes ab, für ihre energetische Verteilung nimmt man aber Gleichgewichtsfunktionen an. Mit zunehmender Intensität des Pumpfeldes ist dies jedoch nicht mehr gerechtfertigt. Eine intensive monochromatische Anregung bewirkt, daß die energetische Verteilung der Ladungsträger von einer Gleichgewichtsverteilung abweicht. Bei Anregung oberhalb der Bandkante kommt es zu einer Akkumulation von freien Ladungsträgern bei den Einteilchenenergien, bei denen die Ladungsträger vom Laser erzeugt werden. Dieser Effekt bewirkt ein partielles Ausbleichen des Kristalls bei der Frequenz des Pumpfeldes. Eine weitere Auswirkung eines intensiven monochromatischen Laserfeldes ist die bereits erwähnte Aufspaltung der Energiebänder der Blochelektronen [33]. Für den Pumpstrahl wird sich die induzierte spektrale Lücke ebenfalls in einer Abnahme des Absorptionskoeffizienten des Kristalls bemerkbar machen. Da die spektrale Lücke immer gerade bei der Frequenz des Pumpstrahles liegt, ist ein zweiter Laserstrahl als Teststrahl notwendig, um die Aufspaltung der Energiebänder zu sondieren.

4.3 Zustandsformen reeller Elektron-Loch-Paare

In diesem Abschnitt wird eine Schilderung der verschiedenen Zustandsformen gegeben, die optisch erzeugte Ladungsträger je nach Art ihrer Erzeugung und in Abhängigkeit von

Teilchendichte und Kristalltemperatur durchlaufen können.

Exzitonen bei niedriger Teilchendichte und bei tiefen Kristalltemperaturen

Stimmt die Frequenz des anregenden Laserstrahls mit der Energie des 1s-Exzitons überein, so werden reelle, gebundene Elektron-Loch-Paare erzeugt. Da der Photonimpuls relativ klein ist, bevölkern die auf diese Weise optisch angeregten Exzitonen einen Zustand, der sich in der Nähe des Minimums $q=0$ des Exzitonbandes $\omega_{1s,q}$ befindet. Die Mehrfachbesetzung dieses Quantenzustandes ist möglich, da sich Exzitonen, die aus zwei Fermionen aufgebaut sind, bei niedrigen Teilchendichten näherungsweise wie Bosonen verhalten. Erst bei höheren Anregungsdichten, wenn sich ihre Wellenfunktionen zu überlappen beginnen, macht sich das für die einzelnen Ladungsträger gültige Pauliprinzip bemerkbar. Im Moment ihrer Entstehung bilden die optisch erzeugten Exzitonen eine entartete Nichtgleichgewichtsverteilung. Durch die Kopplung der Ladungsträger an die Gitterschwingungen kommt es bei endlicher Kristalltemperatur zur Streuung von Exzitonen in andere Impulszustände. Von der Temperatur des Kristalls hängt es auch ab, ob die gebundenen Paarzustände stabil sind. Dies ist der Fall, sofern die mittlere thermische Energie $k_B T$ der Phononen kleiner ist als die Exzitonbindungsenergie E_0 . In diesem Fall bewirkt die Exziton-Phonon-Streuung lediglich eine Thermalisierung der Exzitonverteilung und eine Angleichung ihrer Temperatur an die Temperatur des Kristalls.

Exzitonmoleküle

Ähnlich wie Wasserstoffatome können Paare von Exzitonen Moleküle, sogenannte Biexzitonen, bilden. Die Bindungsenergie E_m von Exzitonmolekülen ist typischerweise um eine Größenordnung kleiner als die Exzitonbindungsenergie. Stabile Biexzitonen findet man deshalb nur bei tiefen Kristalltemperaturen und, da die Molekülbindungsenergie mit der Bandlücke zunimmt, in Halbleitern, die eine besonders große Bandlücke besitzen, wie z.B. Kupferchlorid ($E_g \approx 3.4\text{eV}$). Bei einer kritischen Teilchendichte dissoziieren Exzitonmoleküle in freie Exzitonen.

Optisch können Biexzitonen durch Zweiphotonenabsorption erzeugt werden [34]. Dazu strahlt man Photonen ein, deren Energie um die Hälfte der Bindungsenergie der Moleküle unterhalb der Exzitonenergie liegt. Dadurch werden für die Dauer der Anregung virtuelle Exzitonen erzeugt, aus denen sich reelle Moleküle bilden können. Aufgrund der Nähe der Laserfrequenz zur Exzitonresonanz besitzt dieser Prozess einen großen Wirkungsquerschnitt ('resonance enhancement'). Die Lebensdauer eines Biexzitons ist durch seinen Zerfall in ein Exziton und in ein Photon begrenzt.

Kondensation von Elektron-Loch-Paaren

Unterhalb einer kritischen Temperatur sammelt sich in einem thermalisierten System von Bosonen eine große Anzahl von Teilchen, das sogenannte Kondensat, im energetisch niedrigsten Quantenzustand an. Diesen Effekt nennt man Bose-Einstein-Kondensation. Ein Kondensat von Bosonen besitzt eigentümliche physikalische Eigenschaften. Insbesondere weist es im langwelligen Grenzfall ein lineares Anregungsspektrum auf, was unterhalb einer gewissen Grenzgeschwindigkeit ein reibungsfreies Strömen einer Bose-

Flüssigkeit ermöglicht (Suprafluidität) [28, S. 216]. Die supraflüssige Komponente von $^4\text{Helium}$ bildet ein solches entartetes Quantensystem. Biexzitonen, die als Paare von Bose-Teilchen ebenfalls der Bose-Statistik gehorchen, sollten diesem Effekt unterliegen. Unter Bedingungen, unter denen Exzitonmoleküle nicht stabil sind, erwartet man eine Bose-Einstein-Kondensation der Exzitonen.

In direkten Halbleitern ist es schwierig, Exzitonen innerhalb ihrer Lebensdauer bis unter ihre Kondensationstemperatur abzukühlen. Durch Erhöhung der Anregungsdichte läßt sich zwar die Kondensationstemperatur erhöhen [28, S. 211], die Exzitonen beginnen dann jedoch ihren Bosonencharakter zu verlieren. Ferner verhindert der Polaritoneffekt, das ist die Ausbildung von gekoppelten Exziton-Photon-Moden [12, §3.2.1], die Akkumulation von Exzitonen in ihrem Bandminimum. In indirekten Halbleitern ist die Lebensdauer von Elektron-Loch-Paaren bedeutend größer als in direkten Halbleitern, da die Rekombination von Elektron-Loch-Paaren nur unter gleichzeitiger Emission eines Phonons möglich ist. Die Lebensdauer von Elektron-Loch-Paaren in indirekten Halbleitern liegt in der Größenordnung von Mikrosekunden. Auf dieser Zeitskala ist die Abkühlung der Exzitonen unter ihre Kondensationstemperatur möglich. An den Lumineszenzspektren der indirekten Halbleiter Germanium und Kupferoxid (Cu_2O) hat man die für teilweise Kondensation von Exzitonen erwarteten charakteristischen Anzeichen in der Tat beobachtet [35].

In einem optisch getriebenen Exziton- oder Biexzitonsystem ist auch eine andersartige Kondensation denkbar: während der Dauer der Laseranregung kann der kohärent getriebene Zustand als ein Nukleationszentrum für Elektron-Loch-Paare wirken, die sich in anderen Impulszuständen befinden. So sollten sich Teilchen, die mit einem zusätzlichen Teststrahl erzeugt werden, aufgrund der Neigung von Bosonen, in bereits besetzte Zustände zu streuen, vornehmlich in dem makroskopisch besetzten, kohärent getriebenen Zustand ansammeln. Der Vergleich von Lumineszenzspektren, die in Anwesenheit bzw. in Abwesenheit eines kohärenten Pumpfeldes aufgenommen wurden, hat diese Art der Nichtgleichgewichts-Kondensation tatsächlich gezeigt [36].

Der Mott-Übergang in einem dichten Exzitonsystem

Mit zunehmender Anregungsdichte beginnen sich die Wellenfunktionen der Elektron-Loch-Paare gegenseitig zu überlappen. Da die einzelnen Ladungsträger dem Pauliprinzip unterliegen, müssen hierbei vermehrt energetisch höher liegende Impulszustände im Fermionenzustandsraum besetzt werden. Dies führt zu einer Deformation der Exzitonwellenfunktionen und zu einer Schwächung der Bindung der Elektron-Loch-Paare. Durch das Überlappen der Wellenfunktionen kommt es ferner zu einer gegenseitigen Abschirmung der Coulombanziehung zwischen Elektronen und Löchern. Beide Effekte zusammen, die Phasenraumfüllung der Ladungsträger und die Schwächung der Elektron-Loch-Anziehung durch Abschirmung, führen schließlich dazu, daß oberhalb einer kritischen Teilchendichte gar keine gebundenen Zustände und damit keine individuellen Elektron-Loch-Paare mehr existieren können. In Anlehnung an den Mottschen Metall-Isolator-Übergang [3, S. 326] nennt man diesen Phasenübergang den Mott-Übergang. Die Mott-Dichte liegt bei tiefen Temperaturen in der Größenordnung von $n \approx a_0^{-3}$. Dies ist die Dichte, bei der sich in einem einfachen Bild Kugeln mit dem Bohr-Radius a_0 zu überlappen beginnen. Eine bedeutend niedrigere Mott-Dichte findet man für höhere Temperaturen mit $k_B T > E_0$, da in diesem Fall neben gebundenen Elektron-Loch-Paaren auch freie Ladungsträger existieren, die eine viel stärkere Abschirmung der Elektron-Loch-Anziehung bewirken als gebundene Zustände.

Die Theorie des Mott-Übergangs bei tiefen Temperaturen ist nicht einfach, da in diesem Fall bindende und abschirmende Teilchen identisch sind. Weiterhin hat man die Möglichkeit der Bose-Einstein-Kondensation der Exzitonen zu beachten. In einem normalen, d.h. nicht kondensierten Exzitonsystem, tritt der Mott-Übergang in Form eines Phasenübergangs in ein metallisches Elektron-Loch-Plasma auf (s.u.). Im Falle kondensierter Exzitonen dagegen nimmt man einen Phasenübergang der Exzitonen in eine dielektrische Phase, den sogenannten exzitonischen Isolator an [12, §5.3]. Während sich Elektronen und Löcher bei niedrigen Dichten räumlich zu Exzitonen paaren, liegen sie in dieser Phase, ähnlich wie Cooper-Paare in Supraleitern, im Impulsraum gepaart vor. Die Phase des exzitonischen Isolators konnte allerdings bisher aufgrund der Schwierigkeit, ein dichtes Elektron-Loch-System tief genug abzukühlen, experimentell nicht eindeutig nachgewiesen werden.

Exzitonen in einem Elektron-Loch-Plasma: der Mott-Übergang bei hohen Temperaturen

Ist die thermische Energie $k_B T$ der Gitterschwingungen vergleichbar mit der Bindungsenergie E_0 von Exzitonen oder größer, so kommt es durch Absorption von Phononen und durch Stöße der Exzitonen untereinander zur teilweisen oder zur vollständigen Ionisation der gebundenen Elektron-Loch-Paare. Besonders wirksam in der Ionisation von Exzitonen sind, aufgrund ihrer starken Kopplung an die Ladungsträger, die longitudinal optischen Phononen. In vielen Fällen ist die Frequenz ω_L der LO-Phononen größer als die Exzitonbindungsenergie E_0 . Dann genügt die Absorption eines Phonons zur Ionisation eines Exzitons. Allerdings muß, damit thermisch angeregte LO-Phononen vorliegen, die thermische Energie $k_B T$ in der Größenordnung der Frequenz ω_L liegen, was relativ hohe Temperaturen voraussetzt. In Galliumarsenid beispielsweise ist $\omega_L \approx 37 \text{ meV}$. Dies entspricht einer Temperatur von $T \approx 430 \text{ K}$. Deshalb liegt in GaAs erst etwa bei Zimmertemperatur eine nennenswerte Anzahl thermisch angeregter LO-Phononen vor. Ist die Temperatur so hoch, so werden Exzitonen in Bruchteilen von Pikosekunden ionisiert. Bei der thermischen Ionisation von Exzitonen verschwinden in den optischen Spektren auch bei niedrigen Teilchendichten die Resonanzen gebundener Zustände. Mit zeitaufgelöster Subpikosekunden-Spektroskopie kann dieser Vorgang experimentell verfolgt werden [37].

Im Falle der teilweisen Ionisation der Exzitonen liegt ein zweikomponentiges System von freien und gebundenen Ladungsträgern vor. Die Elektron-Loch-Paare tragen in beiden Zustandsformen gleichermaßen zur Auffüllung des Fermionzustandsraumes bei. Ihre Fähigkeit, elektromagnetische Felder abzuschirmen, ist aber sehr verschieden. Exzitonen sind, da sie als Ganzes elektrisch neutrale Gebilde darstellen, nur einer dielektrischen Abschirmung fähig. Dies geschieht durch virtuelle Übergänge der Exzitonen vom 1s-Niveau in angeregte exzitonische Zustände, und zwar vornehmlich durch solche Übergänge, bei denen ein elektrisches Dipolmoment auftritt, wie beispielsweise beim Übergang $1s \rightarrow 2p$. Freie Ladungsträger dagegen bilden ein System mit metallischen Eigenschaften. Es zeigt sich, daß die metallische Abschirmung durch geladene Teilchen sehr viel wirksamer ist als die dielektrische exzitonische Abschirmung (s. Abschnitt 6.3 und 10.1). Dies ist der Grund, weshalb der Mott-Übergang in einem teilweise ionisierten System von Elektron-Loch-Paaren bei sehr viel niedrigeren Anregungsdichten erfolgt, als bei tiefen Temperaturen in einem rein exzitonischen System. Oberhalb der Mott-Dichte befindet sich das System in einer reinen Plasmaphase. Es zeigt sich aber, daß die Elektron-Loch-Korrelation auch in diesem Zustand noch eine bedeutende Rolle spielt (s.

Abschnitt 7.6).

Die Ladungsträger eines Elektron-Loch-Plasmas bilden im Impulsraum sogenannte Fermisphären. In einem idealen Fermisystem sind bei $T=0\text{K}$ alle Zustände unterhalb der sogenannten Fermienergie besetzt, und alle Zustände oberhalb der Fermienergie sind leer. Die Fermienergie ist identisch mit dem chemischen Potential der Ladungsträger. Man kann zwei Arten von Anregungen einer Fermisphäre unterscheiden. Zum einen können einzelne Ladungsträger, zum Beispiel auf thermischem Wege, aus dem Inneren der Sphäre in Impulszustände oberhalb der Fermienergie angeregt werden. Hierdurch wird der Rand der Fermisphäre auf einer Breite, die der thermischen Energie $k_B T$ entspricht, unscharf. Diese Art der Anregung eines Plasmas nennt man Einteilchenanregung. Zum anderen existieren in einem Fermisystem kollektive Schwingungszustände. Die wichtigste kollektive Anregungsform eines Elektron-Loch-Plasmas bilden longitudinal-optische Dichteschwingungen, bei denen Elektronen und Löcher in Gegenphase oszillieren. Die Quanten dieser Plasmaoszillationen nennt man Plasmonen. Diese Quasi-Teilchen besitzen Bosonencharakter. Physikalisch ähneln die Plasmaschwingungen den longitudinal-optischen Gitterschwingungen. Es besteht auch eine starke Kopplung zwischen beiden Anregungsformen (s. Abschnitt 6.5).

Wie erwähnt erwartet man theoretisch bei tiefen Temperaturen den Kollaps eines Elektron-Loch-Plasmas in die Phase eines exzitonischen Isolators. Ein anderer Phasenübergang, der experimentell in den indirekten Halbleitern Germanium und Silizium nachgewiesen wurde, ist die Tröpfchen-Kondensation von Elektron-Loch-Paaren in eine metallische Elektron-Loch-Flüssigkeit [3, S. 369].

Relaxationsvorgänge nach resonanter Interbandanregung

Regt man den Halbleiter mit Photonenergien an, die größer sind als seine Energielücke E_g , so werden freie Ladungsträger, d.h. Elektron-Loch-Paare in exzitonischen Streuzuständen, erzeugt. Zu Beginn bilden die auf diese Weise erzeugten Elektronen und Löcher energetisch und räumlich Nichtgleichgewichtsverteilungen. Mit zeitaufgelöster Subpikosekunden-Spektroskopie kann man die Relaxation der Ladungsträger in ihren Gleichgewichtszustand beobachten. Der Endzustand dieses Relaxationsprozesses, der sich einstellt, bevor die Rekombination der Elektron-Loch-Paare erfolgt, ist nur durch die Teilchendichte und durch die Kristalltemperatur bestimmt. Ist beispielsweise die Elektron-Loch-Dichte größer als die der Gittertemperatur entsprechende Mott-Dichte, so beobachtet man in den optischen Spektren das Ausbleichen der Exzitonresonanzen [38]. Der Relaxationsprozess selbst kann allerdings bei unterschiedlicher Art der Anregung, vor allem in Abhängigkeit von der Frequenz des anregenden Laserstrahls, ganz verschieden verlaufen.

Als Beispiel sei angenommen, daß die thermische Energie des Kristallgitters kleiner ist als die Frequenz ω_L der longitudinal optischen Phononen, so daß wenige oder gar keine LO-Phononen thermisch angeregt sind. Die freien Ladungsträger werden von dem anregenden Laserstrahl bei den Energien $\epsilon_j(k_p)$ erzeugt, wobei $k_p = (2m(\omega_p - E_g))^{1/2}$ die Wellenzahl des resonanten Übergangs ist. Ist die Einteilchenenergie $\epsilon_j(k_p)$ größer als die LO-Frequenz ω_L , so kommt es auf einer Zeitskala von Pikosekunden durch Emission von LO-Phononen zu einer Relaxation der Ladungsträger in die Nähe ihres Bandminimums. Hierdurch verliert das System der Ladungsträger die Überschussenergie, mit der es erzeugt wurde. Häufig sind die effektiven Massen der Elektronen bedeutend kleiner als die der Löcher, so daß unter Umständen nur die Elektronen LO-Phononen emittieren können. In diesem Stadium verläuft die Thermalisierung von Elektronen und Löchern

sehr verschieden.

Unterhalb der Schwelle zur LO-Phononemission ist der Relaxationsprozess verlangsamt, da dann nur die schwächere Kopplung der Ladungsträger an akkustische Phononen verbleibt. Die Streuung der Ladungsträger untereinander bewirkt aber, ohne daß dabei der Energieinhalt des Elektron-Loch-Systems verändert wird, eine Thermalisierung ihrer energetischen Verteilungen. Die Temperaturen von Elektronen und Löchern gleichen sich nun an. In dichten Elektron-Loch-Systemen verläuft diese Thermalisierung ebenfalls auf der Pikosekunden-Zeitskala. Während des Relaxationsvorganges können sich bei nicht zu hoher Anregungsdichte und bei niedriger Kristalltemperatur auch bereits gebundene Elektron-Loch-Paare ausbilden.

Schließlich beginnt sich die Temperatur des Elektron-Loch-Systems an die Temperatur des Kristallgitters anzugleichen. Häufig, insbesondere bei tiefen Kristalltemperaturen, verbleibt aber innerhalb der Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare ein beträchtlicher Unterschied zwischen der Gittertemperatur und der Ladungsträgertemperatur. Beispielsweise ist es kaum möglich, ein Elektron-Loch-Plasma auf Heliumtemperatur abzukühlen, was aufgrund der besprochenen verschiedenen möglichen Phasenübergänge eines Elektron-Loch-Plasmas bei tiefen Temperaturen gerade besonders interessant wäre. Eine Möglichkeit, auf optischem Wege ein relativ kaltes Elektron-Loch-Plasma zu erzeugen, ergibt sich unter Ausnutzung des in Abschnitt 3.4 in vorläufiger Form besprochenen Effektes der dichteabhängigen Bandkantenabsenkung. Hierzu strahlt man Laserlicht ein, dessen Frequenz ω_p möglichst genau mit der Energie der Bandkante E_g übereinstimmt. Dann wird zunächst nur eine geringe Anzahl freier Ladungsträger erzeugt. Aufgrund der resultierenden Reduktion der Bandkante können nun aber Zustände oberhalb der Bandminima besetzt werden, was eine weitere Bandkantenabsenkung zur Folge hat. Ist die Verringerung der Energielücke vergleichbar mit der Summe der Fermienergien der erzeugten Elektronen und Löcher, so entsteht auf diesem Wege ein entartetes Plasma.

4.4 Der Einfluß reeller Anregungen auf die optischen Spektren

Im vorangegangenen Abschnitt wurden unterschiedliche Phasen und Phasenübergänge von reellen Elektron-Loch-Anregungen in Halbleitern beschrieben. Aus technologischer Sicht ist besonders der Mott-Übergang von Exzitonen in einem Elektron-Loch-Plasma ein interessanter Effekt, da mit der Ionisation der gebundenen Paarzustände starke optische Nichtlinearitäten verbunden sind, unter deren Ausnutzung sich optische Schaltelemente konstruieren lassen. Oberhalb der Ionisationstemperatur der Exzitonen verbleibt als nichtlinearer optischer Effekt die Abhängigkeit der Bandlücke von der Plasmadichte. Große technische Bedeutung besitzt heute bereits die Plasma-Phase der Ladungsträger. Die optische Verstärkung durch Elektron-Loch-Plasmen findet Anwendung in kommerziellen Laserdioden.

Optische Spektren im Bereich des Mott-Übergangs

Es wurde besprochen, daß Exzitonen mit zunehmender Teilchendichte durch die Auffüllung des Fermionen-Zustandsraumes und durch die Abschirmung der anziehenden Coulombwechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern instabil werden. In den optischen Spektren äußert sich dies durch ein Verschwinden der Resonanzen der gebundenen Zustände. Eine in vielfältigen Experimenten an reellen Elektron-Loch-Systemen bestätigte bemerkenswerte Regel ist, daß sich die energetische Lage ω_{1s} der Exzitonresonanz im gesamten Anregungsbereich bis zum Verschwinden der Exzitonlinie bei der Mott-Dichte praktisch nicht verändert. Dies gilt sowohl für ein reines Exzitonsystem als auch für Exzitonen, die sich in einem Plasma aus freien Elektronen und Löchern bewegen. Man kann sagen, daß die Konstanz der Exzitonenergie eine Folge der Ladungsneutralität gebundener Elektron-Loch-Paare ist. Die genaue theoretische Begründung dieser Regel stellt ein nichttriviales Problem dar. Im Gegensatz zur Exzitonenergie werden die Energien freier Ladungsträger durch die Wechselwirkung der Teilchen stark beeinflusst. Die Bandkante E_g , die die untere Grenze des exzitonischen Streukontinuums bildet, wird mit zunehmender Anregungsdichte zu kleineren Energien verschoben. Hierdurch verringert sich die energetische Differenz zwischen den Streuzuständen und dem $1s$ -Zustand. Diese Differenz stellt aber die Bindungsenergie der Elektron-Loch-Paare dar. Oberhalb der Plasmadichte, bei der die renormierte Bandkante E'_g die Exzitonenergie ω_{1s} erreicht, können keine gebundenen Zustände mehr existieren. Das Kriterium $E'_g = \omega_{1s}$ definiert die Mott-Dichte.

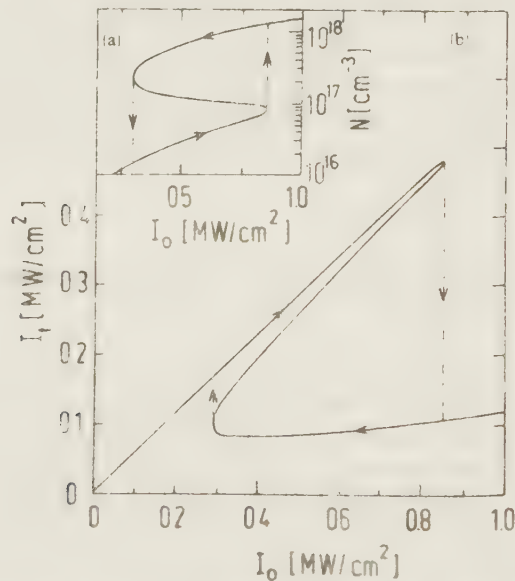
Bei resonanter Anregung von Exzitonen ist mit dem Mott-Übergang eine starke Abnahme des Absorptionskoeffizienten des Pumpstrahles und eine vergleichbar starke Änderung des Brechungsindex verbunden. Ein Teststrahl kann neben dem Ausbleichen der Exzitonresonanz auch die Rotverschiebung des Streukontinuums detektieren. In Abschnitt 7.5 wird die Vielteilchentheorie des Mott-Übergangs diskutiert. Dort werden experimentelle und theoretische optische Spektren gezeigt, die das Verschwinden der Exzitonresonanz und die Reduktion der Bandlücke mit zunehmender Plasmadichte zeigen.

Optische Nichtlinearitäten bei Raumtemperatur: induzierte Absorption und intrinsische optische Bistabilität

Die geschilderte starke optische Nichtlinearität eines Elektron-Loch-Systems am Mott-Übergang besitzt den Nachteil, daß sie eine Kühlung des Kristalls unter die Ionisationstemperatur der Exzitonen voraussetzt. In ausgedehnten Kristallen liegt diese Temperatur meist weit unterhalb der Raumtemperatur. In Galliumarsenid beispielsweise beträgt die Ionisationstemperatur etwa $E_0/k_B \approx 60\text{K}$. In Halbleiterschichtstrukturen, in denen quasi-zweidimensionale Elektron-Loch-Systeme erzeugt werden können, ist die Exzitonbindungsenergie größer [39], so daß dort Exzitonen unter Umständen auch noch bei Raumtemperatur stabil sind. Sind gebundene Elektron-Loch-Paare thermisch instabil, so verbleibt als nichtlinearer optischer Mechanismus die Verschiebung der Bandkante in Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte. Dieser Effekt läßt sich folgendermaßen ausnutzen:

Bei hohen Temperaturen besitzt der Absorptionskoeffizient eines Halbleiters einen energetischen Ausläufer in den Bereich unterhalb der Bandkante, der von der spektralen Verbreiterung der Blochzustände durch die Elektron-Phonon-Wechselwirkung herrührt. Ein Laserstrahl, dessen Frequenz in diesem Ausläufer liegt, wird zunächst nur schwach

absorbiert. Die Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren durch diesen Laserstrahl bewirkt aber eine Absenkung der Bandkante, die eine Zunahme des Absorptionskoeffizienten zur Folge hat. Diesen Effekt, bei dem der Laserstrahl seine Absorption selbst verursacht, nennt man induzierte Absorption. Betreibt man den Laser im Dauerstrichbetrieb, so stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Absorptionsrate und Rekombinationsrate ein. Dem Anstieg der Teilchenzahl durch die Vergrößerung des Absorptionskoeffizienten wirkt zunächst entgegen, daß die Rekombinationsrate der Ladungsträger ebenfalls mit der Teilchendichte zunimmt. Bei Erhöhung der Laserintensität kann jedoch eine kritische Dichte erreicht werden, bei der der differentielle Anstieg der Absorptionsrate mit der Dichte größer ist als der differentielle Anstieg der Rekombinationsrate. Dann kommt es zu einem lawinenartigen Anwachsen der Zahl der Ladungsträger, bis ein Zustand erreicht wird, in dem wieder die Rekombinationsrate dominiert. Dies ist dann ein Zustand hoher Ladungsträgerdichte und hoher Absorptionsrate. Dieser Zustand bleibt zunächst auch dann stabil, wenn nun die Laserintensität wieder verringert wird. Schließlich wird aber eine weitere kritische Ladungsträgerdichte erreicht, bei der die differentielle Abnahme der Absorptionsrate bei abnehmender Dichte größer ist als die differentielle Abnahme der Rekombinationsrate. An diesem zweiten Sprungpunkt wird der Zustand hoher Absorption und hoher Teilchendichte instabil, und das System kehrt zurück in einen Zustand niedriger Anregungsdichte. Somit gibt es einen gewissen Intensitätsbereich, in dem zu einer Laserintensität zwei stabile Zustände des Systems existieren. Das System ist folglich optisch bistabil. Dieses Verhalten ist in Figur 4.1 dargestellt. Da im besprochenen Fall keine Rückkopplung des Lichtfeldes durch einen Resonator erforderlich ist, spricht man bei diesem Effekt von intrinsischer optischer Bistabilität [31].



Figur 4.1. Intrinsische optische Bistabilität in CdS (nach Koch et al. [31]). a) Ladungsträgerdichte N und b) transmittierte Lichtintensität I_t als Funktion der Eingangsintensität I_0 .

Ein optisch bistabiles System kann als optischer Schalter fungieren. Betreibt man das System beispielsweise mit einem Haltestrahl auf dem Ast der niedrigen

Ladungsträgerdichte und etwas unterhalb des Sprungpunktes, so genügt ein kleiner zusätzlicher Lichtpuls, um es vom Zustand hoher Transmission in den Zustand hoher Absorption zu versetzen. Mit Hilfe der optischen Bistabilität soll es eventuell möglich werden, elektronische Schaltungen in effizienter Weise durch optische Schaltungen zu ersetzen [32]. Einer der Vorteile optischer Schaltungen läge darin, daß sich Lichtstrahlen wechselwirkungsfrei durchdringen, während sich elektrische Ströme in dichtgepackten Schaltungen gegenseitig stören können.

Optische Spektren oberhalb der Mott-Dichte: optische Verstärkung durch ein Elektron-Loch-Plasma

Bei hoher Lichtintensität tritt durch die Reduktion der Bandlücke auch bei Anregung im Frequenzbereich der Exzitonresonanz die Situation der resonanten Interbandanregung ein. Der Pumpelaser erzeugt dann freie Elektron-Loch-Paare, die durch Stöße untereinander und durch Streuung an Gitterschwingungen rasch zum jeweiligen Bandminimum relaxieren. Aufgrund der fortschreitenden Bandkantenabsenkung findet die Erzeugung der Ladungsträger mit zunehmender Anregungsintensität bei immer höheren Energien relativ zu den Bandminima statt, so daß an ein Ausbleichen des Kristalls durch den Pumpstrahl zunächst nicht zu denken ist. In diesem Anregungsregime findet daher keine starke Veränderung der optischen Konstanten des Pumpstrahles statt.

Mit dem Spektrum, das mit einem zusätzlichen Teststrahl aufgenommen wird, geht dagegen mit steigender Pumpintensität eine interessante qualitative Veränderung vor. Durch die Relaxation der Ladungsträger zu den Bandminima entsteht die Möglichkeit, daß für einen gewissen Bereich von Wellenvektoren k die Besetzungszahl n_{ck} eines k -Zustandes im Leitungsband größer ist als die Besetzungszahl n_{vk} des entsprechenden Zustandes im Valenzband. Ein solches System nennt man optisch invertiert. Die teilweise Inversion der Besetzungszahlen hat zur Folge, daß im zugehörigen Frequenzbereich die Rate der stimulierten Emission von Lichtquanten größer ist als die Absorptionsrate, denn dann gilt

$$n_{ck} - n_{vk} = n_{ck} (1 - n_{vk}) - n_{vk} (1 - n_{ck}) > 0$$

(vgl. Glg. (3.6) und Glg. (3.8)). Der Absorptionskoeffizient ist in diesem Spektralbereich folglich negativ. Ein Lichtstrahl, dessen Frequenz der Energie des optischen Übergangs $|ck\rangle \rightarrow |vk\rangle$ entspricht, wird bei der Propagation durch den Kristall nicht geschwächt sondern verstärkt. Der Frequenzbereich, in dem diese optische Verstärkung auftritt, liegt unterhalb der Frequenz ω_p des Pumpelasers (vgl. Abschnitt 7.6). Der Pumpstrahl selbst wird in jedem Fall geschwächt. Das Prinzip der optischen Verstärkung durch stimulierte Emission von Lichtquanten ist die Voraussetzung für Lasertätigkeit. Die Verstärkung von Lichtstrahlen durch Elektron-Loch-Paaren wird in Laserdioden technisch angewendet. In kommerziellen Geräten findet die Erzeugung des Elektron-Loch-Plasmas auf elektronischem Wege statt [28, S. 374].

5. KORRELATIONEFFEKTE ZWISCHEN OPTISCH ERZEUGTEN LADUNGSTRÄGERN

5.1 Die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger

In Abschnitt 3.4 wurde die Gleichung der optischen Polarisation im Rahmen der Hartree-Fock-Approximation hergeleitet (Glg. (3.26)). In dieser Näherung ist das Coulombpotential der Ladungsträger durch das gemittelte Potential der Ladungsverteilung ersetzt. Diese Ersetzung kann einen schweren Mangel der Theorie bedeuten. Die Ursache hierfür liegt in der abschirmenden Reaktion geladener Teilchen auf elektromagnetische Felder. Das lokale Coulombfeld jeder einzelnen Ladung stellt eine Abweichung des Coulombpotentials von seinem Mittelwert dar und bewirkt eine Störung, auf die die übrigen Ladungsträger reagieren. In der Umgebung eines Elektrons etwa sammeln sich vermehrt Löcher an, wohingegen die Ladungsträger die unmittelbare Umgebung gleichartiger Ladungen meiden. Durch diesen Korrelationseffekt wird das Coulombpotential der Ladungen effektiv geschwächt, und die Reichweite der Kräfte, die zwischen den Ladungsträgern wirken, wird herabgesetzt. Insbesondere sind Elektronen und Löcher in Anwesenheit anderer Ladungsträger weniger stark aneinander gebunden. In der Hartree-Fock-Approximation wird die Reaktion der Ladungsträger auf lokale Störungen gar nicht berücksichtigt. Die wichtigste Erweiterung der Theorie besteht deshalb darin, diesen Effekt der Abschirmung der Coulombwechselwirkung einzuarbeiten. Wie wichtig der Effekt der Abschirmung ist, hängt sehr von der Zustandsform ab, in der die Ladungsträger vorliegen. Sehr wirksam werden die Coulombkräfte durch die frei beweglichen Ladungsträger eines Elektron-Loch-Plasmas abgeschirmt (metallische Abschirmung). Für die theoretische Beschreibung von Exzitonen, die sich einem Elektron-Loch-Plasma bewegen, ist die Berücksichtigung der Abschirmung deshalb unbedingt erforderlich. In Abschnitt 6.1 wird eine Theorie der Abschirmung der Coulombwechselwirkung in einem Elektron-Loch-Plasma angegeben.

Elektronen und Löcher in gebundenen Zuständen schirmen elektromagnetische Störungen weniger gut ab, da Elektron-Loch-Paare als Ganzes elektrisch neutral sind. Sie können elektromagnetische Felder nur durch Bildung eines elektrischen Dipolmomentes (oder höherer Momente ihrer Ladungsverteilung) während virtueller Übergänge in angeregte Zustände schwächen (dielektrische Abschirmung).

In Abschnitt 10.1 wird die Abschirmung der Coulombwechselwirkung durch virtuelle Elektron-Loch-Paare berechnet und mit der Abschirmung durch reelle $1s$ -Exzitonen verglichen. Es zeigt sich dort, daß virtuelle Anregungen eine besonders schwache abschirmende Wirkung besitzen. Dies ist der Grund dafür, weshalb zur Beschreibung des exzitonischen optischen Stark-Effektes (s. Kapitel 9) bereits die Hartree-Fock-Theorie verwendbar ist.

Bevor eine Theorie der Abschirmung entwickelt wird, soll in den nächsten Abschnitten festgestellt werden, in welcher Weise ein abgeschirmtes Coulombpotential in die Gleichung der optischen Polarisation eingeht.

Die Abschirmung der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger wird durch die noch zu bestimmende longitudinale dielektrische Funktion des Systems beschrieben. Für den Fall

eines nicht angeregten Kristalls und in der ϵ_0 -Approximation (s. Abschnitt 3.3) ist die longitudinale dielektrische Funktion durch die Konstante ϵ_0 gegeben. Diese Konstante, die die Abschirmung durch die Polarisierbarkeit der Rumpffunktionen, durch virtuelle Interbandcoulombstreuung und durch die longitudinal optischen Phononen berücksichtigt, ist bei endlicher Ladungsträgerdichte um den Anteil der Elektron-Loch-Paare zur Abschirmung zu ergänzen. Wie bereits im Fall der Abschirmung durch LO-Phononen ist die dielektrische Funktion im allgemeinen sowohl vom Wellenvektor q als auch von der Frequenz ω abhängig. Die Abhängigkeit der dielektrischen Funktion vom Frequenzspektrum der Störung hängt damit zusammen, daß die Umordnungsprozesse der Ladungsträger infolge einer elektromagnetischen Störung nicht instantan stattfinden, sondern eine gewisse Zeit benötigen. Das dynamisch abgeschirmte Coulombpotential lautet

$$V_s(q, \omega) = \frac{V_{0q}}{\epsilon_L(q, \omega)} \quad (5.1)$$

mit der longitudinalen dielektrischen Funktion $\epsilon_L(q, \omega)$. Mit der Frequenzabhängigkeit des Potentials (5.1) läßt sich nicht sofort etwas anfangen, da in die Gleichung (3.26) der optischen Polarisation nur das statische Potential $V_q = V_{0q}/\epsilon_0$ eingeht. Tatsächlich wird sich zeigen (s. Abschnitt 5.3), daß diese von den Retardierungseffekten im System der Ladungsträger herrührende Frequenzabhängigkeit die Polarisationsgleichung wesentlich komplizierter macht. Die erste Idee ist deshalb, wie bereits in Abschnitt 3.3 im Fall der longitudinal optischen Phononen, das statisch abgeschirmte Potential

$$V_{sq} = V_s(q, \omega=0) \quad (5.2)$$

zu verwenden. Hierbei liegt die Annahme zugrunde, daß die Reaktion der Gesamtheit der Ladungsträger auf die lokalen Störungen der Ladungsneutralität rasch verläuft im Vergleich zur typischen Geschwindigkeit, mit der sich die einzelnen Ladungsträger, die die Störung verursachen, bewegen. Diese Annahme kann beispielsweise für die Abschirmung der Coulombanziehung eines gebundenen Elektron-Loch-Paares durch freie Ladungsträger durchaus gerechtfertigt sein, sofern der Bohrsche Radius des Exzitons relativ groß und die Umlauffrequenz der Teilchen entsprechend klein ist. Da dies gerade bei starker Abschirmung, also bei hoher Plasmadichte der Fall ist, ist das Konzept der statischen Abschirmung für hohe Dichten geeignet. Bei niedrigen Dichten dagegen, wenn das Plasma der Relativbewegung gebundener Elektron-Loch-Paare nicht mehr instantan zu folgen vermag, werden dynamische Korrekturen notwendig. Die genauen Voraussetzungen für die Verwendbarkeit der Näherung statischer Abschirmung werden in Abschnitt 6.7 bei der Berechnung des Korrelationsanteils der Elektron-Selbstenergie erkennbar.

Ogleich die Annahme einer nahezu instantanen Abschirmung physikalisch sinnvoll sein kann, führt die direkte Ersetzung des 'nackten' Coulombpotentials V_q durch ein statisch abgeschirmtes Potential V_{sq} in der Gleichung der optischen Polarisation, Glg. (3.26), nicht zu korrekten Resultaten. Richtig beschrieben wird bei dieser Vorgehensweise zwar die Verminderung der Exzitonbindungsenergie mit zunehmender Anregungsdichte. Im Widerspruch zur experimentell beobachteten Konstanz der Exzitonenergie ergibt sich

jedoch eine Verschiebung der Exzitonresonanz zu höheren Energien. Der Fehler in einer solchen Rechnung liegt darin, daß bei der einfachen Ersetzung $V_q \rightarrow V_{sq}$ die Absenkung der Einteilchenenergien nicht richtig erfaßt wird. In diesem Schema erhält man nach Gleichung (3.28) nur eine statisch abgeschirmte Austauschselfstenergie, die sich aber als klein erweist gegen einen Beitrag, der an dieser Stelle noch fehlt. Bei diesem Beitrag handelt es sich um eine erste nichttriviale Korrektur zur Gleichung der optischen Polarisation, zu deren Herleitung im folgenden von der Theorie der Greenschen Funktionen Gebrauch gemacht werden wird.

5.2 Die Greenschen Funktionen der Ladungsträger

Im letzten Abschnitt wurde erwähnt, daß die einfache Ersetzung des nackten Coulombpotentials V_q durch ein statisch abgeschirmtes Potential V_{sq} nicht möglich ist. Dennoch ist die Idee einer statischen Abschirmung als Minimalkonzept unter Umständen sinnvoll. Sie bedarf nur einer genaueren Herleitung als Grenzfall einer Theorie, die die Dynamik der Abschirmungseffekte berücksichtigt. Zur Formulierung einer solchen Theorie erweist sich die mathematische Technik der Greenschen Funktionen für Vielteilchensysteme als nützliches Instrument. Eine vollständige Herleitung der Gleichung der optischen Polarisation mit Hilfe Greenscher Funktionen wurde von verschiedenen Autoren gegeben [40-44]. Ich will mich deshalb darauf beschränken, die resultierende Gleichung als Verallgemeinerung der Hartree-Fock-Theorie plausibel zu machen.

In Abschnitt 3.4 wurde die Gleichung der optischen Polarisation in der Hartree-Fock-Näherung, Glg. (3.26), hergeleitet. Neben der optischen Polarisation p_k treten in Gleichung (3.26) die Besetzungszahlen n_{pk} auf, für die bisher noch keine Gleichung aufgestellt wurde. Beide Größen, p_k und n_{pk} , bilden Elemente der reduzierten Dichtematrix

$$\langle a_{pk}^+(t) a_{pk}(t) \rangle.$$

Dieser Ausdruck ist diagonal bezüglich der Variablen Spin, Wellenvektor und Zeit. Ferner ist hier die Reihenfolge der Operatoren auf die Normalordnung festgelegt. Bezüglich der Spinvariablen läßt sich auch weiterhin annehmen, daß nur Erwartungswerte zweier Fermioperatoren gleichen Spins auftreten. Dies ist deshalb möglich, weil der Spin der Teilchen beim optischen Übergang erhalten bleibt und sich auch bei der Coulombstreuung der Teilchen untereinander und bei der Wechselwirkung mit Phononen nicht ändert. Es sei auch weiterhin angenommen, daß das System räumlich homogen ist und dies näherungsweise auch unter dem Einfluß des Lichtfeldes bleibt. Dann existieren nach Gleichung (3.24) nur Erwartungswerte zweier Fermioperatoren zu gleichem Wellenvektor. Erst in Abschnitt 10.1, bei der Berechnung der longitudinalen dielektrischen Funktion virtueller Elektron-Loch-Paare, wird auch eine Störung der räumlichen Homogenität betrachtet. Um über die Hartree-Fock-Näherung hinausgehen zu

können, benötigt man etwas allgemeinere Korrelationsfunktionen bezüglich der Zeitvariablen. Zur Beschreibung von Retardierungseffekten erweist es sich als günstig, Erwartungswerte von Paaren von Fermioperatoren zu berechnen, die unterschiedliche Zeitargumente besitzen. Solche Korrelationsfunktionen enthalten Informationen über die mikroskopische Dynamik des Systems. Hierdurch wird man, da man die Vertauschungsrelationen von Operatoren zu verschiedenen Zeitargumenten in der Regel nicht kennt, auch auf die Definition von Korrelationsfunktionen mit unterschiedlicher Anordnung der Operatoren geführt. Die Greenschen Funktionen der Blochelektronen seien definiert durch

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^{++}(tt') = -i \langle T a_{\rho\mathbf{k}\sigma}(t) a_{\nu\mathbf{k}\sigma}^+(t') \rangle, \quad (5.3a)$$

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^{-+}(tt') = -i \langle a_{\rho\mathbf{k}\sigma}(t) a_{\nu\mathbf{k}\sigma}^+(t') \rangle, \quad (5.3b)$$

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt') = +i \langle a_{\nu\mathbf{k}\sigma}^+(t') a_{\rho\mathbf{k}\sigma}(t) \rangle, \quad (5.3c)$$

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^{--}(tt') = -i \langle T^* a_{\rho\mathbf{k}\sigma}(t) a_{\nu\mathbf{k}\sigma}^+(t') \rangle. \quad (5.3d)$$

In der Definition (5.3) ist T der Wicksche Zeitordnungsoperator, dessen Wirkung definiert ist durch

$$T a(t)a^+(t') = \theta(t-t') a(t)a^+(t') - \theta(t'-t) a^+(t')a(t) \quad (5.4)$$

mit der Heavyside-Funktion

$$\theta(\tau) = 1 \quad \text{für} \quad \tau > 0, \quad (5.5)$$

$$= 0 \quad \text{für} \quad \tau < 0.$$

Der Operator T^* ordnet die Fermioperatoren in umgekehrter Reihenfolge:

$$T^* a(t)a^+(t') = \theta(t'-t) a(t)a^+(t') - \theta(t-t') a^+(t')a(t). \quad (5.6)$$

In der Literatur findet man die Definition (5.3) der Greenschen Funktionen gelegentlich zusammengefaßt zu einer einzigen Gleichung [45]. Zu diesem Zweck wird formal neben

der gewöhnlichen Zeitachse, die von $t=-\infty$ bis $t=+\infty$ reicht und als "+"-Zeitachse bezeichnet wird, eine "-"-Zeitachse eingeführt, die von $t=+\infty$ nach $t=-\infty$ verläuft. Ein auf beiden Zeitachsen definierter Zeitordnungsoperator regelt dann die Reihenfolge der Operatoren, wobei "-"-Zeiten als später als "+"-Zeiten gelten. Dieser Darstellungsweise entstammt das obere Indexpaar der Greenschen Funktionen (5.3).

Die Definition (5.3) ist offenbar redundant. Es genügt bereits die Kenntnis von zwei der vier Greenschen Funktionen $G^{\xi\xi'}$ um auch die restlichen beiden angeben zu können. Man gibt dennoch alle vier Funktionen an, weil die Theorie Gleichungen für die Matrix $(G)^{\xi\xi'}$ liefert. Neben den Funktionen (5.3) sind noch die retardierte (r) und die avancierte (a) Greensche Funktion gebräuchlich. Diese Funktionen sind definiert als

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^r(tt') = -i \theta(t-t') A_{\rho\nu\mathbf{k}}(tt'), \quad (5.7a)$$

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^a(tt') = +i \theta(t'-t) A_{\rho\nu\mathbf{k}}(tt') \quad (5.7b)$$

mit der sogenannten Spektralfunktion

$$A_{\rho\nu\mathbf{k}}(tt') = i (G_{\rho\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt') - G_{\rho\nu\mathbf{k}}^{+ -}(tt')) \quad (5.8)$$

$$= i (G_{\rho\nu\mathbf{k}}^r(tt') - G_{\rho\nu\mathbf{k}}^a(tt')).$$

Es gelten die Beziehungen

$$G^r = G^{++} - G^{+-} = G^{-+} - G^{--}, \quad (5.9a)$$

$$G^a = G^{++} - G^{-+} = G^{+-} - G^{--}. \quad (5.9b)$$

Die physikalische Bedeutung der Greenschen Funktionen leuchtet erst ein, nachdem man einige Zeit mit ihnen umgegangen ist. Unmittelbar ersichtlich ist nur, daß die Kenntnis der Funktionen G^{+-} die Berechnung der optischen Polarisation $p_{\mathbf{k}}$ und der Besetzungszahlen $n_{\rho\mathbf{k}}$ gestattet:

$$p_{\mathbf{k}} = -i G_{c\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt), \quad (5.10a)$$

$$n_{\rho\mathbf{k}} = -i G_{\rho\rho\mathbf{k}}^{+-}(tt). \quad (5.10b)$$

Neben der Funktion G^{+-} , Glg. (5.3c), besitzt die Spektralfunktion A , Glg. (5.8), große physikalische Bedeutung. Oftmals drückt man deshalb alle Greenschen Funktionen durch die Funktionen G^{+-} und A bzw. durch G^{+-} und G^r oder G^a aus. Es folgen nun Beispiele zur Interpretation von Greenschen Funktionen.

i) Nichtwechselwirkende Teilchen

In der Beschreibung eines Vielteilchensystems mit Hilfe Greenscher Funktionen treten neben den Funktionen G , Glg. (5.3), als Rechengrößen auch die Funktionen G_0 wechselwirkungsfreier Teilchen auf, obwohl diese Funktionen in einem wechselwirkenden System keine physikalische Bedeutung besitzen. Die Greenschen Funktionen wechselwirkungsfreier Teilchen lassen sich leicht angeben. Mit Hilfe des Hamiltonoperators (1.17) der Blochelektronen und der Heisenberg-Gleichung (3.5) folgt nach Definition (5.3)

$$G_{0\rho\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt') = +i \langle a_{\nu\mathbf{k}s}^+(0) a_{\rho\mathbf{k}s}(0) \rangle e^{-i(\epsilon_{\rho\mathbf{k}}t - \epsilon_{\nu\mathbf{k}}t')}. \quad (5.11)$$

Es ist sinnvoll, als Randbedingung anzunehmen, daß sich das System der freien Teilchen im thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Dann verschwindet der Erwartungswert auf der rechten Seite von Gleichung (5.11) im Falle unterschiedlicher Bandindizes, da ein Gleichgewichtssystem nicht optisch polarisiert ist. Aus Gleichung (5.11) folgt dann

$$G_{0\rho\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt') = +i \delta_{\rho\nu} n_{0\rho\mathbf{k}} e^{-i\epsilon_{\rho\mathbf{k}}(t - t')}. \quad (5.12)$$

Die Korrelationsfunktion (5.12) hängt nur von der Zeitdifferenz $\tau=t-t'$ ab. Das gilt generell für Systeme, die sich in einem stationären Zustand befinden. In nichtstationären Systemen dagegen hängen die Greenschen Funktionen außer von $\tau=t-t'$ auch von der Zeit $T=(t+t')/2$ ab. Analog zu Gleichung (5.12) ergibt sich

$$G_{0\rho\nu\mathbf{k}}^{-+}(tt') = -i \delta_{\rho\nu} (1 - n_{0\rho\mathbf{k}}) e^{-i\epsilon_{\rho\mathbf{k}}(t - t')}. \quad (5.13)$$

Damit folgt für die Spektralfunktion (5.8)

$$A_{0\rho\nu\mathbf{k}}(tt') = \delta_{\rho\nu} e^{-i\epsilon_{\rho\mathbf{k}}(t - t')}. \quad (5.14)$$

Nach einer Fouriertransformation $\tau \rightarrow \omega$ in den Frequenzraum erhält man

$$G_{0\rho\nu\mathbf{k}}^{+-}(\omega) = i n_{0\rho\mathbf{k}} A_{0\rho\nu\mathbf{k}}(\omega) \quad (5.15)$$

und

$$A_{0\rho\nu\mathbf{k}}(\omega) = 2\pi \delta_{\rho\nu} \delta(\omega - \epsilon_{\rho\mathbf{k}}). \quad (5.16)$$

Die Gleichungen (5.15) und (5.16) besitzen eine anschauliche Bedeutung. Die Spektralfunktion A_0 , Glg. (5.16), besagt, daß ein freies Blochelektron, welches sich im Zustand $|\rho\mathbf{k}\rangle$ befindet, die Energie $\omega=\epsilon_{\rho\mathbf{k}}$ besitzt. Folglich bestimmt die Spektralfunktion das energetische Spektrum und die Zustandsdichte der Ladungsträger. Die Bedeutung von Gleichung (5.15) ist, daß das durch die Spektralfunktion A_0 festgelegte Energiespektrum von den Ladungsträgern gemäß der Verteilungsfunktion $n_{0\rho\mathbf{k}}$ besetzt wird. Diese Interpretation der Funktionen G^{+-} und A bleibt im wesentlichen auch in wechselwirkenden Systemen korrekt. Für die retardierte Greensche Funktion (5.7a) findet man für freie Blochelektronen nach Gleichung (5.14)

$$G_{0\rho\nu\mathbf{k}}^r(tt') = -i \delta_{\rho\nu} \theta(t-t') e^{-i\epsilon_{\rho\mathbf{k}}(t-t')}. \quad (5.17)$$

Das ergibt im Fourierraum

$$G_{0\rho\nu\mathbf{k}}^r(\omega) = \frac{\delta_{\rho\nu}}{\omega - \epsilon_{\rho\mathbf{k}} + i\delta}. \quad (5.18)$$

Die infinitesimale Größe $\delta=0^+$ in Gleichung (5.18) benötigt man zum einen, um die Konvergenz der Fouriertransformation $\tau \rightarrow \omega$ zu sichern, und zum anderen, um zu erreichen, daß bei der Rücktransformation $\omega \rightarrow \tau$ nur Beiträge für $\tau > 0$ entstehen (vgl. Glg. (3.51)). Für die avancierte Greensche Funktion, Glg. (5.7b), folgt analog

$$G_{0\rho\nu\mathbf{k}}^a(tt') = +i \delta_{\rho\nu} \theta(t'-t) e^{-i\epsilon_{\rho\mathbf{k}}(t-t')} \quad (5.19)$$

und

$$G_{0\rho\nu\mathbf{k}}^a(\omega) = \frac{\delta_{\rho\nu}}{\omega - \epsilon_{\rho\mathbf{k}} - i\delta}. \quad (5.20)$$

ii) Wechselwirkende Teilchen im thermodynamischen Gleichgewicht

Als Beispiel eines wechselwirkenden Systems soll ein Elektron-Loch-Plasma betrachtet werden, das sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Da ein Gleichgewichtssystem nicht optisch polarisiert ist, verschwinden wiederum diejenigen Greenschen Funktionen $G_{\rho\nu}$, die unterschiedliche Bandindizes tragen.

Die Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander und die Elektron-Phonon-Wechselwirkung haben zur Folge, daß die freien Blochzustände nicht mehr die Eigenzustände der Elektronen bilden. Eine Auswirkung der Wechselwirkung ist, daß die nackten Einteilchenenergien $\epsilon_{\rho\mathbf{k}}$ um einen gewissen Betrag, um die sogenannte Selbstenergie, verschoben werden. Man spricht dann von renormierten Einteilchenenergien. In Abschnitt 3.4 wurde bereits die Verschiebung der Einteilchenenergien im Rahmen der Hartree-Fock-Näherung diskutiert.

Eine andere Folge der Wechselwirkung ist, daß die Blochzustände eine endliche Lebensdauer erhalten. Ein Teilchen kann sich nur für eine begrenzte Zeit in einem Blochzustand aufhalten, bevor es durch Streuung in einen anderen Zustand versetzt wird. Die begrenzte Lebensdauer von Blochzuständen aufgrund von Stoßprozessen findet formal Ausdruck in einem endlichen Imaginärteil der Selbstenergie. Der Übergang von der retardierten Greenschen Funktion freier Teilchen, Glg. (5.18), zur retardierten Greenschen Funktion in einem wechselwirkenden System geschieht also durch die Einführung einer komplexen Selbstenergie Σ^r :

$$G_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) = \frac{1}{\omega - \epsilon_{\rho\mathbf{k}} - \Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega)}. \quad (5.21)$$

Die retardierte Selbstenergie Σ^r wurde in Gleichung (3.34) zerlegt in den Hartree-Fock-Anteil Σ^{HF} und in den noch zubestimmenden Korrelationsanteil Σ^{C} . Die Korrelationselbstenergie Σ^{C} , die dynamische Prozesse wie Abschirmung und inelastische Streuung beschreibt, ist frequenzabhängig. Frequenzabhängige Selbstenergien sind im allgemeinen komplex. Die Hartree-Fock-Selbstenergie, Glg. (3.28), dagegen, die das System der Ladungsträger als starr und homogen behandelt, ist frequenzunabhängig und reell. Die Greensche Funktion (5.21) ist die Lösung der bekannten Dyson-Gleichung

$$G_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) = G_{0\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) + G_{0\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) \Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) G_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega). \quad (5.22)$$

Graphisch veranschaulicht man die Dyson-Gleichung durch das Diagramm

$$\overleftrightarrow{G} = \overleftrightarrow{G_0} + \overleftrightarrow{G_0} \text{---} \overbrace{\hspace{1cm}}^{\Sigma} \text{---} \overleftrightarrow{G} \quad (5.23)$$

Der Ausdruck $G_0 \Sigma G$ auf der rechten Seite des Diagramms (5.23) ist nicht immer ein einfaches Produkt wie in Gleichung (5.22). In dieser Form gilt die Dyson-Gleichung nur für ein stationäres, räumlich homogenes System und für den Fall verschwindender optischer Polarisierung. In nichtstationären oder räumlich inhomogenen Systemen ist der Ausdruck $G_0 \Sigma G$ ein kompliziertes Faltungsintegral (s. Glg. (10.6) und Glg. (10.89)). In einem optisch polarisierten System treten Greensche Funktionen $G_{\rho\nu}$ und Selbstenergien $\Sigma_{\rho\nu}$ mit unterschiedlichen Bandindizes $\rho \neq \nu$ auf, so daß aus dem Produkt $G_0 \Sigma G$ ein Matrixprodukt bezüglich der Bandindizes wird (s. Glg. (5.51)).

Die Schreibweise Σ^r legt nahe, daß es analog zu den vier Greenschen Funktionen $G^{\xi\xi'}$, Glg. (5.3), auch vier verschiedene Selbstenergien $\Sigma^{\xi\xi'}$ gibt. Tatsächlich lautet die vollständige Dyson-Gleichung

$$G^{\xi\xi'} = G_0^{\xi\xi'} + \sum_{\xi_1 \xi_2} G_0^{\xi\xi_1} \Sigma^{\xi_1 \xi_2} G^{\xi_2 \xi'}. \quad (5.24)$$

Die Selbstenergien $\Sigma^{\xi\xi'}$ hängen in ähnlicher Weise zusammen wie die Greenschen Funktionen $G^{\xi\xi'}$. Nach [58, §94 ('+' $\longleftrightarrow$ '-')] gelten die Beziehungen

$$\Sigma^r = \Sigma^{++} + \Sigma^{+-} = -\Sigma^{-+} - \Sigma^{--}, \quad (5.25a)$$

$$\Sigma^a = \Sigma^{++} + \Sigma^{-+} = -\Sigma^{+-} - \Sigma^{--}. \quad (5.25b)$$

Es ist ein günstiger Umstand, daß aus Gleichung (5.24) mit Hilfe der Beziehungen (5.9) und (5.25) die Dyson-Gleichung (5.22) folgt, in der nur retardierte Funktionen auftreten. Eine solche Beziehung kann für die "+-" -Funktionen beispielsweise nicht hergeleitet werden.

Um die Spektralfunktion A , Glg. (5.8), berechnen zu können, benötigt man neben der retardierten noch die avancierte Greensche Funktion G^a , Glg. (5.7b). Mit der retardierten Greenschen Funktion kennt man aber auch die avancierte Greenschen Funktion, denn nach Definition (5.7) gilt

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^a(tt') = (G_{\nu\rho\mathbf{k}}^r(t't))^*. \quad (5.26)$$

Hieraus folgt für ein stationäres System

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^a(\omega) = (G_{\nu\rho\mathbf{k}}^r(\omega))^*. \quad (5.27)$$

Ebenso gilt auch

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\mathbf{a}}(\omega) = (\Sigma_{\nu\rho\mathbf{k}}^{\mathbf{r}}(\omega))^* \quad (5.28)$$

Mit den Gleichungen (5.21) und (5.27) findet man für die Spektralfunktion A, Glg. (5.8),

$$A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega) = \frac{2 \Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega)}{(\omega - \epsilon_{\rho\mathbf{k}} - \Delta_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega))^2 + \Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}^2(\omega)} \quad (5.29)$$

Hierbei wurde die komplexe Selbstenergie $\Sigma^{\mathbf{r}}$ in ihren Realteil und ihren Imaginärteil aufgespalten:

$$\Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^{\mathbf{r}}(\omega) = \Delta_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega) - i\Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega) \quad (5.30)$$

Die Funktion Γ erweist sich als eine positive Größe (s. Glg. (6.62)), die in der Regel von Null verschieden ist. In Fällen, in denen Γ verschwindet, ist $\Gamma \rightarrow \delta = 0^+$ zu setzen. Durch die Wechselwirkung der Teilchen ist die singuläre Spektralfunktion A_0 , Glg. (5.16), zu einer analytischen Funktion 'verbreitert' worden. Wären die Größen Δ und Γ frequenzunabhängig, so würde die Spektralfunktion A, Glg. (5.29), eine Lorentzlinie darstellen. Das Maximum der Spektralfunktion liegt in der Regel in der Nähe der renormierten Einteilchenenergie $e_{\rho\mathbf{k}}$, die durch die Gleichung

$$e_{\rho\mathbf{k}} = \epsilon_{\rho\mathbf{k}} + \Delta_{\rho\rho\mathbf{k}}(e_{\rho\mathbf{k}}) \quad (5.31)$$

definiert ist. Die renormierte Energie $e_{\rho\mathbf{k}}$ ist demjenigen Quasiteilchenzustand zuzuordnen, der sich durch die Wechselwirkung der Teilchen aus dem Blochzustand $|\rho\mathbf{k}\rangle$ bildet. Oftmals wird die Funktion A approximiert durch die Lorentzlinie

$$A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega) \simeq \frac{2 \Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}}{(\omega - e_{\rho\mathbf{k}})^2 + \Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}^2} \quad (5.32)$$

mit

$$\Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}} = \Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}(e_{\rho\mathbf{k}}) \quad (5.33)$$

Die Größe $1/\Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}$ gibt die mittlere Zeit an, für die ein im Blochzustand $|\rho\mathbf{k}\rangle$ präpariertes Elektron in diesem Zustand verweilen kann, bevor es in einen anderen Zustand gestreut

wird. Die Stoßverbreiterung Γ repräsentiert also die Streurrate bzw. die inverse Stoßzeit der Blochelektronen. Im Bild der Quasiteilchen, die sich aus den Blochelektronen bilden, gibt die Breite $\Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}$ der Spektralfunktion an, mit welchem Gewicht der Blochzustand $|\rho\mathbf{k}\rangle$ am Aufbau energetisch benachbarter Quasiteilchenzustände beteiligt ist. Die tatsächliche Form der Spektralfunktion (5.29) kann, vor allem in ihren energetischen Ausläufern, erheblich von der Form der Lorentzlinie (5.32) abweichen. Der Fehler, den man durch die Approximation (5.32) begeht, hält sich aber in Grenzen, wenn die Spektralfunktion in einem Integral über einen größeren Bereich von Impulsen $\mathbf{k}$ auftritt, da die Näherung (5.32) die exakte Beziehung

$$\int \frac{d\omega}{2\pi} A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega) = A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\text{tt}) = 1 \quad (5.34)$$

erfüllt. Aufgrund der Beziehung (5.34) kann man die Spektralfunktion $A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega)$ als die Wahrscheinlichkeit verstehen, daß ein Teilchen mit dem Impuls $\mathbf{k}$ die Energie ω besitzt. Aus der Eigenschaft $G^r(\tau < 0) = 0$ läßt sich die nützliche Spektraldarstellung der retardierten Greenschen Funktion folgern:

$$G_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) = \int \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega')}{\omega - \omega' + i\delta^+} \quad (5.35)$$

Ebenso gilt für die retardierte Selbstenergie

$$\Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) = \int \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{2\Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega')}{\omega - \omega' + i\delta^+} \quad (5.36)$$

Um das System vollständig beschreiben zu können, muß neben der Spektralfunktion (5.29), die das Energiespektrum der Quasiteilchen festlegt, noch die Funktion G^+ berechnet werden, die angibt, in welcher Weise sich die Ladungsträger auf das Energiespektrum verteilen. In Nichtgleichgewichtssystemen setzt dies die Lösung der Quanten-Boltzmann-Gleichung voraus [46], was meist keine leichte Aufgabe ist. In nichtstationären Systemen ist zudem das Energiespektrum der Teilchen zeitabhängig. Es bedeutet deshalb eine große Erleichterung in der theoretischen Beschreibung eines Vielteilchensystems, wenn man annehmen kann, daß sich das System näherungsweise in einem thermodynamischen Gleichgewichtszustand befindet. In Abschnitt 4.2 wurde besprochen, daß diese Annahme für ein Elektron-Loch-Plasma gerechtfertigt sein kann, da die Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare groß ist im Vergleich zu der Zeit, in der die Thermalisierung der Ladungsträgerverteilungen durch Streuprozesse stattfindet.

Befindet sich das Elektron-Loch-Plasma im thermodynamischen Gleichgewicht, so ist der Dichteoperator ρ , mit dem nach Gleichung (3.4) Erwartungswerte von Operatoren zu bilden sind, gegeben durch den Dichteoperator der großkanonischen Verteilung [47]

$$\rho = \frac{e^{-\beta K}}{\text{Sp}(e^{-\beta K})}, \quad (5.37)$$

mit $\beta = 1/k_B T$ und

$$K = H - \sum_{\rho} \mu_{\rho} N_{\rho}. \quad (5.38)$$

In Gleichung (5.38) sind die Größen μ_{ρ} die chemischen Potentiale der Leitungs- und Valenzbandelektronen. Ist der Dichteoperator des Systems bekannt, so kennt man auch die Besetzungszahlen der Quasiteilchenzustände. Im Falle der thermischen Verteilung (5.37) ergibt sich, daß die Ladungsträger die Quasiteilchenzustände gemäß der Fermiverteilungen

$$f_{\rho}(\omega) = \frac{1}{e^{\beta(\omega - \mu_{\rho})} + 1} \quad (5.39)$$

besetzen. Die Funktion G^{+-} ist in Verallgemeinerung von Gleichung (5.15) gegeben durch

$$G_{\rho\rho\mathbf{k}}^{+-}(\omega) = i f_{\rho}(\omega) A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega) \quad (5.40)$$

[17, Glg. (1.15)]. Ebenso gilt

$$\Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^{+-}(\omega) = -2i f_{\rho}(\omega) \Gamma_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega). \quad (5.41)$$

Für Gleichgewichtssysteme genügt also zur Berechnung der Einteilcheneigenschaften die Kenntnis der Spektralfunktion A oder irgendeiner der Greenschen Funktionen (5.3). Aus Gleichung (5.40) läßt sich die Besetzungszahl eines Blochzustandes berechnen zu

$$n_{\rho\mathbf{k}} = -i G_{\rho\rho\mathbf{k}}^{+-}(tt) = \int \frac{d\omega}{2\pi} f_{\rho}(\omega) A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega). \quad (5.42)$$

Für die Besetzungszahlen (5.42) der Blochzustände ergibt sich im allgemeinen keine Fermiverteilung. Nur in der sogenannten Quasiteilchenapproximation, in der man die Stoßverbreiterung der Spektralfunktionen vernachlässigt,

$$A_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega) \rightarrow 2\pi \delta(\omega - e_{\rho\mathbf{k}}), \quad (5.43)$$

ergibt sich

$$n_{\rho\mathbf{k}} = f_{\rho\mathbf{k}} \quad (5.44)$$

mit $f_{\rho\mathbf{k}} = f_{\rho}(e_{\rho\mathbf{k}})$. Für gegebene Gesamtdichten n_{ρ} lassen sich die chemischen Potentiale μ_{ρ} bestimmen aus der Gleichung

$$n_{\rho} = \frac{2}{V} \sum_{\mathbf{k}} n_{\rho\mathbf{k}}. \quad (5.45)$$

Die Quasiteilchennäherung (5.43) liefert hierfür

$$n_{\rho} = \frac{2}{V} \sum_{\mathbf{k}} f_{\rho\mathbf{k}}. \quad (5.46)$$

Ausgefeilte Näherungen für die verbreiterte Spektralfunktion (5.29) zeigen, daß man bei der Verwendung von Gleichung (5.46) keinen großen Fehler macht, obwohl die Ersetzung (5.43) sehr grob ist [12, Glg. (4.63)].

In die Greenschen Funktionen G^r und G^{+-} des wechselwirkenden Systems, Glg. (5.21) und (5.40), geht die retardierte Greensche Funktion G_0^r der freien Teilchen und damit das nichtrenormierte Energiespektrum der Ladungsträger ein. Dagegen sind die Funktionen des wechselwirkenden Systems unabhängig von der Verteilung $n_{0\rho\mathbf{k}}$ der freien Teilchen, die in Gleichung (5.12) als willkürliche Randbedingung eingeführt wurde. Es gibt aber auch Fälle, in denen die Verteilung n_0 in den Gleichungen des wechselwirkenden Systems die Rolle einer Anfangsbedingung spielt [48]. Das sind diejenigen Situationen, in denen man ein System, dessen Anfangszustand man als bekannt voraussetzt und den man als

'wechselwirkungsfrei' definiert, einer externen Störung aussetzt. Erst diese Störung und die Wechselwirkungen der von ihr hervorgerufenen Reaktionen im System werden als Wechselwirkung behandelt. In der vorliegenden Arbeit ist der 'wechselwirkungsfreie' Zustand der Grundzustand des Kristalls. Wechselwirkung tritt erst mit der Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren ein. Man hat also

$$n_{0\rho\mathbf{k}} = \delta_{\rho\nu} \quad (5.47)$$

zu setzen. Bei der expliziten Beschreibung des optischen Anregungsvorganges hängen die Greenschen Funktionen des wechselwirkenden Systems von der Anfangsverteilung (5.47) ab. Erst nach einiger Zeit, wenn die Thermalisierung der erzeugten Ladungsträger eintritt, verliert sich die Erinnerung des Systems an die Anfangsbedingung.

5.3 Die Dyson-Gleichung der optischen Polarisation

In diesem Abschnitt wird die Gleichung der optischen Polarisation mit Hilfe der Greenschen Funktionen ausgedrückt. Dies kann zunächst ohne explizite Kenntnis des Korrelationsanteils Σ^C der Elektronen selbstenergie durchgeführt werden. Für diese Funktion wird in Abschnitt 5.4 eine Näherung angegeben.

In einem ersten Schritt sei nochmals die Gleichung (3.26) der optischen Polarisation in der Hartree-Fock-Approximation notiert, an dieser Stelle aber ausgedrückt durch die Greenschen Funktionen G^{+-} und durch die Selbstenergien Σ^{HF} . Da Selbstenergien im allgemeinen wie die Greenschen Funktionen von zwei Zeitargumenten abhängen, sei die Definition (3.28) der Hartree-Fock-Selbstenergie verallgemeinert zu

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\text{HF}}(tt') = \delta(tt') \left[-\delta_{\rho c} \delta_{\nu v} \mu_{\mathbf{k}} E_0(t) - \delta_{\rho v} \delta_{\nu c} \mu_{\mathbf{k}}^* E_0^*(t) + i \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} G_{\rho\nu\mathbf{k}'}^{+-}(tt) \right]. \quad (5.48)$$

In diese Definition wurde nun auch das innere Feld $\Sigma V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'}$ und die Wechselwirkung der Elektronen mit dem Lichtfeld einbezogen. Der Hartree-Anteil der Selbstenergie, der in einem elektrisch neutralen, räumlich homogenen System verschwindet, wurde nicht mehr notiert. Die Gleichung der optischen Polarisation, Glg. (3.26), läßt sich damit schreiben als

$$i \frac{\partial}{\partial t} G_{c\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt) = (\epsilon_{c\mathbf{k}} - \epsilon_{v\mathbf{k}}) G_{c\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt) \quad (5.49)$$

$$+ \sum_{\mu} \int dt_1 [\Sigma_{c\mu\mathbf{k}}^{\text{HF}}(tt_1) G_{\mu\nu\mathbf{k}}^{+-}(t_1t) - G_{c\mu\mathbf{k}}^{+-}(tt_1) \Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}^{\text{HF}}(t_1t)].$$

An der Formulierung (5.49) der Polarisationsgleichung wird deutlich, daß die Theorie wesentlich schwieriger werden wird, sofern Teile der Korrelationsselbstenergie zu berücksichtigen sind, die im Gegensatz zum Hartree-Fock-Anteil (5.48) nicht instantan sind, also nichtdiagonal bezüglich der Zeitvariablen (das heißt im Fourierraum: frequenzabhängig). Es genügt dann nicht mehr, die Greenschen Funktionen $G(tt')$ zu gleichen Zeiten $t=t'$ zu kennen. Eine weitere Komplikation entsteht dadurch, daß dem Korrelationsanteil der Selbstenergie, da er nichtdiagonal bezüglich der Zeitvariablen ist, wie den Greenschen Funktionen ein Zeitindexpaar zuzuordnen ist. Während für die instantane Hartree-Fock-Selbstenergie

$$\Sigma^{\text{HF},\xi\xi'} = \Sigma^{\text{HF}} \delta_{\xi\xi'} \quad (5.50)$$

gilt, besitzt die Korrelationsselbstenergie Nichtdiagonalelemente Σ^{+-} und Σ^{-+} (s. Abschnitt 5.2). Um eine Gleichung für die optische Polarisation zu erhalten, die dynamische Korrelationseffekte berücksichtigt, muß auf die allgemeine Dyson-Gleichung zurückgegriffen werden. Unter der Annahme räumlicher Homogenität lautet die Dyson-Gleichung des optisch polarisierten Halbleiters [40]

$$G_{\rho\rho\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(tt') = G_{0\rho\rho\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(tt') + \sum_{\xi_1\xi_2\rho_1\rho_2} \int dt_1 \int dt_2 G_{0\rho\rho_1\mathbf{k}}^{\xi\xi_1}(tt_1) \Sigma_{\rho_1\rho_2\mathbf{k}}^{\xi_1\xi_2}(t_1t_2) G_{\rho_2\rho\mathbf{k}}^{\xi_2\xi'}(t_2t'). \quad (5.51a)$$

Ebenso gilt

$$G_{\rho\rho\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(tt') = G_{0\rho\rho\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(tt') + \sum_{\xi_1\xi_2\rho_1\rho_2} \int dt_1 \int dt_2 G_{\rho\rho_1\mathbf{k}}^{\xi\xi_1}(tt_1) \Sigma_{\rho_1\rho_2\mathbf{k}}^{\xi_1\xi_2}(t_1t_2) G_{0\rho_2\rho\mathbf{k}}^{\xi_2\xi'}(t_2t'). \quad (5.51b)$$

Während in einem Gleichgewichtssystem die Greenschen Funktionen $G(tt')$ und die Selbstenergien $\Sigma(tt')$ nur von der Differenz $\tau=t-t'$ ihrer Zeitargumente abhängen, hängen diese Funktionen im optisch getriebenen System auch von der Zeit $T=(t+t')/2$ ab. Im folgenden werden beide Schreibweisen

$$G(tt') \hat{=} G(T, \tau), \quad \Sigma(tt') \hat{=} \Sigma(T, \tau) \quad (5.52)$$

verwendet. Durch Anwendung der Zeitableitung $\partial/\partial t$ auf Gleichung (5.51a) und durch Anwendung von $\partial/\partial t'$ auf Gleichung (5.51b) folgt mit dem Operator

$$\frac{\partial}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial t'} \quad (5.53)$$

unter Verwendung der Beziehungen (5.12) und (5.17)

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial T} G_{\rho\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt') &= (\epsilon_{\rho\mathbf{k}} - \epsilon_{\nu\mathbf{k}}) G_{\rho\nu\mathbf{k}}^{+-}(tt') \\ &+ \sum_{\mu} \int dt_1 [\Sigma_{\rho\mu\mathbf{k}}^r(tt_1) G_{\mu\nu\mathbf{k}}^{+-}(t_1t') - \Sigma_{\rho\mu\mathbf{k}}^{+-}(tt_1) G_{\mu\nu\mathbf{k}}^s(t_1t')] \\ &+ \sum_{\mu} \int dt_1 [G_{\rho\mu\mathbf{k}}^r(tt_1) \Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}^{+-}(t_1t') - G_{\rho\mu\mathbf{k}}^{+-}(tt_1) \Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}^s(t_1t')]. \end{aligned} \quad (5.54)$$

Gleichung (5.54) liefert für $t=t'$ und $(\rho\nu)=(c\nu)$ die Verallgemeinerung der Gleichung (5.49) der optischen Polarisation. Für $\rho=\nu$ läßt sich aus Gleichung (5.54) die Quanten-Boltzmann-Gleichung zur Bestimmung der Ladungsträgerdichten ableiten [46].

5.4 Die Einteilchenselbstenergie

Aufgrund der Stärke und der großen Reichweite der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger ist es nicht möglich, diese Wechselwirkung störungstheoretisch zu behandeln. Anstelle des nackten Coulombpotentials V ist aber das abgeschirmte Potential V_s , Glg. (5.1), eine geeignete Entwicklungsgröße. Oftmals genügt es, in linearer Ordnung bezüglich der Größe V_s zu arbeiten. In dieser Ordnung besteht das Ergebnis für die Selbstenergie der Ladungsträger darin, daß im Austauschterm der Hartree-Fock-Selbstenergie (3.28) bzw. (5.48) das nackte Coulombpotential V durch das dynamisch

abgeschirmte Potential V_s zu ersetzen ist:

$$\Sigma = V_s G \quad (5.55)$$

Die Näherung (5.55) wird als Hartree-Fock-Näherung mit Abschirmung bzw. als 'abgeschirmte Hartree-Fock-Näherung' bezeichnet ('screened Hartree-Fock'). Auf eine Herleitung dieses Ergebnisses möchte hier verzichten und stattdessen auf die Literatur verweisen [17, §12]. Das abgeschirmte Coulombpotential V_s sei nun zerlegt in das nackte Potential V und in den Anteil ΔV_s , der die Abschirmung beschreibt:

$$V_s = V + \Delta V_s. \quad (5.56)$$

In Abschnitt 6.1 werden Formeln für die Größe ΔV_s angegeben. Es zeigt sich dort, daß das abgeschirmte Coulombpotential Eigenschaften einer Boson-Greensfunktion besitzt. Die Zerlegung (5.56) eingesetzt in Gleichung (5.55) liefert auch die Aufteilung (3.34) der Elektronen selbstenergie in den Hartree-Fock- und den Korrelationsanteil. Es gilt

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{C,\xi\xi'}(tt') = i\xi\xi' \sum_{\mathbf{k}'} \Delta V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{\xi\xi'}(tt') G_{\rho\nu\mathbf{k}'}^{\xi\xi'}(tt'). \quad (5.57)$$

In den Kapiteln 8 und 10 werden die Auswirkungen von dynamischen Korrelationseffekten im System der Ladungsträger auf die optischen Spektren des Halbleiters diskutiert. Für diejenigen physikalischen Situationen aber, auf die das Konzept der statischen Abschirmung anwendbar ist, soll zuvor die oftmals verwendete sogenannte quasistatische Approximation angegeben werden, in der die retardierten Anteile der Korrelationsselbstenergie vernachlässigt werden.

5.5 Die quasistatische Approximation der Einteilchenselbstenergie

Mit Hilfe des Ausdrucks (5.57) für die Korrelationsselbstenergie läßt sich nun die in Abschnitt 5.1 diskutierte Näherung der statischen, d.h. instantanen Abschirmung

realisieren. Ziel ist es dabei, die Gleichung (5.54) für die Greensche Funktion $G^{+-}(tt')$ auf eine Gleichung zurückzuführen, in der die Greenschen Funktionen, wie in der Hartree-Fock-Approximation, Glg. (5.49), nur zu gleichen Zeitargumenten $t=t'$ benötigt werden.

Das Konzept der statischen Abschirmung ist dann verwendbar, wenn man annehmen kann, daß sich das System der Ladungsträger und der Phononen rasch, im Idealfall instantan, auf lokale Störungen einstellen kann. Ist dies der Fall, so läßt sich in der Funktion ΔV_s die zeitliche Retardierung vernachlässigen, d.h. es sollte näherungsweise

$$\Delta V_s(tt') \propto \delta(t - t') \quad (5.58)$$

angenommen werden können. Faßt man die Größe ΔV_s als Funktion der Variablen $\tau=t-t'$ und $T=(t+t')/2$ auf, so hat man die Fourierdarstellung

$$\Delta V_{sq}^{\xi\xi'}(T, \tau) = \int \frac{d\omega}{2\pi} \Delta V_{sq}^{\xi\xi'}(T, \omega) e^{-i\omega\tau}. \quad (5.59)$$

Die Annahme, daß sich das System rasch auf Störungen einstellen kann, bedeutet, daß die Frequenzen der in Betracht kommenden Störungen klein sind auf der Frequenzskala, über die das Integral (5.59) zu erstrecken ist. Dann läßt sich die Größe $\Delta V_s(T, \omega)$ durch ihren niederfrequenten Grenzwert $\Delta V_s(T, \omega=0)$ approximieren. Dies führt auf die gewünschte Beziehung (5.58):

$$\Delta V_{sq}^{\xi\xi'}(tt') \rightarrow \Delta V_{sq}^{\xi\xi'}(T, \omega=0) \delta(\tau). \quad (5.60)$$

In der Näherung (5.60) ist auch die Korrelationsselbstenergie (5.57) nichtretardiert:

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{C,\xi\xi'}(T, \tau) = i\xi\xi' \delta(\tau) \sum_{\mathbf{k}'} \Delta V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{\xi\xi'}(T) G_{\rho\nu\mathbf{k}'}^{\xi\xi'}(T, \tau) \quad (5.61)$$

mit der Abkürzung $\Delta V_s(T) = \Delta V_s(T, \omega=0)$. An dieser Stelle möchte ich eine unrichtige Aussage aus unserer Arbeit [44] korrigieren. Wir vertraten dort die Ansicht, daß in der Näherung (5.60) für die Größe ΔV_s aus $t=t'$ auch $\xi=\xi'$ folgen müsse, wie das auch für das instantane nackte Coulombpotential V der Fall ist. Wir kamen so zu dem Schluß, daß in dieser Näherung die Selbstenergien Σ^{+-} und Σ^{-+} , die als Streuraten interpretiert werden können, verschwinden. Dies ist, wie ich später erkannte, nicht korrekt. Vielmehr bedeutet die Näherung (5.60), daß alle Streuprozesse als elastische Streuprozesse behandelt werden, denn die Energie ω stellt eine Rückstoßenergie dar. In Abschnitt 6.1 werden

explizite Ausdrücke für die Funktion ΔV_s angegeben, an denen dies erkennbar wird. Nach Gleichung (5.61) gilt in der Näherung nichtretardierter Wechselwirkung

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{+-}(T,\tau) = -i \delta(\tau) \sum_{\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+-}(T) G_{\rho\nu\mathbf{k}'}^{+-}(T,\tau) \quad (5.62)$$

($\Delta V_s^{+-} = V_s^{+-}$). Für die Selbstenergie $\Sigma^{G,r}$ folgt mit Hilfe der Beziehungen (5.9) und (5.25)

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{G,r}(T,\tau) = i \delta(\tau) \sum_{\mathbf{k}'} [\Delta V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^r(T) G_{\rho\nu\mathbf{k}'}^{+-}(T,\tau) \quad (5.63)$$

$$+ \Delta V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^r(T) G_{\rho\nu\mathbf{k}'}^r(T,\tau) + V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+-}(T) G_{\rho\nu\mathbf{k}'}^r(T,\tau)].$$

Der erste Beitrag in Gleichung (5.63) besitzt dieselbe Struktur wie die Austauschselbstenergie in Gleichung (5.48). Diese beiden Größen ergänzen sich zur Selbstenergie des 'abgeschirmten Austausches' (sx='screened exchange')

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{sx}(T,\tau) = i \delta(\tau) \sum_{\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}(T) G_{\rho\nu\mathbf{k}'}^{+-}(T,\tau) \quad (5.64)$$

mit $V_s = V_s^r(T, \omega=0)$. Bis zu diesem Punkt besteht die Selbstenergiekorrektur aufgrund von Abschirmung nur in der Ersetzung $V \rightarrow V_s$. Für die Coulombanziehung zwischen den Elektronen und den Löchern ($\rho \neq \nu$) ist diese Ersetzung korrekt. Für die Einteilchenenergien ($\rho = \nu$) liefert aber die zweite Zeile in Gleichung (5.63) eine weitere wichtige Korrektur. In diesem Beitrag tritt die retardierte Greensche Funktion $G^r(tt')$ mit identischen Zeitargumenten $t=t'$ auf. Nach Definition (5.7) gilt

$$G_{\rho\nu\mathbf{k}}^r(tt) = -i \delta_{\rho\nu} \theta(\tau=0). \quad (5.65)$$

Dieser Wert wird durch die Definition (5.5) nicht festgelegt. Die Dirac-Identität, Glg. (3.60), impliziert aber

$$\theta(\tau=0) = i G_{0\rho\rho\mathbf{k}}^r(tt)$$

$$= i \int \frac{d\omega}{2\pi} \frac{1}{\omega - \epsilon_{\rho\mathbf{k}} + i\delta} = \frac{1}{2}. \quad (5.66)$$

Damit wird die zweite Zeile in Gleichung (5.63) zu

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\text{ch}}(T, \tau) = \delta_{\rho\nu} \delta(\tau) \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} (\Delta V_{\mathbf{s},\mathbf{q}}^{\text{r}}(T) + V_{\mathbf{s},\mathbf{q}}^{+-}(T)). \quad (5.67)$$

Die Selbstenergie (5.67) ist die sogenannte Coulombloch-Selbstenergie (ch='coulomb hole'). Sie gibt die Änderung der Einteilchenenergie $\epsilon_{\rho\mathbf{k}}$ an, die daraus resultiert, daß die Ladungsträger ihre Coulombfelder gegenseitig abschirmen. In der unmittelbaren Umgebung eines Elektrons etwa nimmt die Wahrscheinlichkeit, weitere Elektronen zu finden, rasch mit dem Abstand zum Ort des betrachteten Elektrons ab. Dagegen nimmt die Wahrscheinlichkeit, Löcher zu finden, mit abnehmendem Abstand zu dem Elektron zu. Bei dieser Verarmungszone von Elektronen und Anhäufung von Löchern um ein Elektron spricht man von einem sogenannten Coulombloch. Ebenso bildet sich natürlich um ein Loch ein Coulombloch. Nicht einfach vorzustellen ist, daß jedes zur Abschirmung einer Ladung beitragende Teilchen auch selbst abgeschirmt wird. Zum Coulombloch hinzu tritt das vom Pauliprinzip herrührende Austauschloch zwischen gleichartigen Teilchen gleicher Spinrichtung, das durch die Austauschselbstenergie Σ^{α} , Glg. (5.64), berücksichtigt wird. In der Näherung (5.63) besteht also das Quasiteilchen, das sich durch die Wechselwirkung der Ladungsträger aus einem Elektron bildet, aus dem nackten Elektron (genauer: Polaron) zusammen mit seinem Coulombloch und seinem Austauschloch.

Durch die Ausbildung des Coulombloches um die Ladungsträger wird, da sich gleichartige Ladungen meiden und entgegengesetzte Ladungen nahekomen, die Wechselwirkungsenergie der Teilchen verringert. Somit werden die Einteilchenenergien durch diesen Effekt abgesenkt. Eine weitere Konsequenz des Coulombloches ist, daß durch die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger die Anziehungskraft zwischen Elektronen und Löchern effektiv geschwächt wird. Da diese beiden Effekte, die Absenkung der Einteilchenenergien (Selbstenergiekorrekturen) und die Schwächung der Elektron-Loch-Anziehung (Vertexkorrekturen), dieselbe Ursache besitzen, müssen sie in der Theorie gleichberechtigt berücksichtigt werden. Dies ist der Grund dafür, weshalb man in der Hartree-Fock-Approximation der Gleichung der optischen Polarisation, Glg. (3.26), nicht einfach das nackte Potential $V_{\mathbf{q}}$ durch das statisch abgeschirmte Potential V_{aq} ersetzen darf, denn auf diese Weise berücksichtigt man zwar die Verringerung der Elektron-Loch-Anziehung, erhält aber nicht die zugehörige Absenkung der Einteilchenenergien. Bei der (unzulässigen) Ersetzung $V_{\mathbf{q}} \rightarrow V_{\text{aq}}$ spricht man von der statischen Approximation, während das Ergebnis (5.64), (5.67) als quasistatische Approximation bezeichnet wird.

Die Notwendigkeit der gleichberechtigten Behandlung von Selbstenergiekorrekturen und Vertexkorrekturen wird in dieser Arbeit noch mehrmals erkennbar werden. Es existiert

ein allgemeines Theorem, die bekannten Ward-Identitäten, das die Zusammenhänge zwischen Selbstenergiekorrekturen und Vertexkorrekturen angibt [9, §7.1.D].

In Abschnitt 6.7 zeigt sich für ein Elektron-Loch-Plasma, das sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, daß die beiden Beiträge zur Coulombloch-Selbstenergie (5.67) rein reell bzw. rein imaginär sind. Unter dieser Annahme soll Gleichung (5.67) auch hier diskutiert werden. Der Realteil der Coulombloch-Selbstenergie, der die Verschiebung der Einteilchenenergien angibt, läßt sich nach Fouriertransformation $\tau \rightarrow \omega$ schreiben als

$$\text{Re } \Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\text{ch}}(T, \omega) = \delta_{\rho\nu} \frac{1}{2} (V_{\mathbf{s}}(\mathbf{r}, T) - V(\mathbf{r}))_{\mathbf{r} \rightarrow 0}. \quad (5.68)$$

Dies ist die klassische Selbstenergie einer Punktladung in einem System von Ladungsträgern. Die beiden Terme in Gleichung (5.68) sind einzeln betrachtet für $\mathbf{r} \rightarrow 0$ divergent, der Grenzwert ihrer Differenz ist aber endlich (vgl. Glg. (6.34)). Der Imaginärteil der Coulombloch-Selbstenergie ist gegeben durch

$$\text{Im } \Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\text{ch}}(T, \omega) = \delta_{\rho\nu} \frac{1}{2i} V_{\mathbf{s}}^{+-}(\mathbf{r}=0, T). \quad (5.69)$$

Dieser Ausdruck gibt die Streurate der Ladungsträger unter Vernachlässigung der Rückstoßenergien an (vgl. Glg. (6.75)).

Am Ende dieses Abschnitts soll die Renormierung der Einteilchenenergien im Elektron-Loch-Bild angegeben werden. Für die Energien der Elektronen erhält man mit den Gleichungen (5.64) und (5.68)

$$\begin{aligned} \epsilon_{\mathbf{ek}} &= \epsilon_{\mathbf{ek}} + \text{Re } \Sigma_{\text{cc}\mathbf{k}}^{\text{r}}(\omega = \epsilon_{\mathbf{ek}}) \\ &= \epsilon_{\mathbf{ek}} - \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{s}, \mathbf{k}-\mathbf{k}'} n_{\mathbf{ek}'} + \frac{1}{2} (V_{\mathbf{s}}(\mathbf{r}) - V(\mathbf{r}))_{\mathbf{r} \rightarrow 0}. \end{aligned} \quad (5.70)$$

Beide Beiträge zur Renormierung in Gleichung (5.70) liefern eine Absenkung der Einteilchenenergie. Die Greensche Funktion der Löcher ist nach Gleichung (1.18) und Definition (5.3) gegeben durch

$$G_{\text{hh}\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(t|t') = - G_{\text{vv}, -\mathbf{k}}^{\xi'\xi}(t|t'). \quad (5.71)$$

Analog gilt

$$\Sigma_{hhk}^{\xi\xi'}(tt') = - \Sigma_{vv,-k}^{\xi\xi'}(t't). \quad (5.72)$$

Von der Selbstenergie Σ_{vv} ist, wie in Abschnitt 3.4 diskutiert wurde, die Austauschwechselwirkung mit dem vollen Valenzband zu subtrahieren. Für die renormierte Einteilchenenergie der Löcher ergibt sich also

$$\begin{aligned} e_{hk} &= \epsilon_{hk} - \text{Re } \Sigma_{vv,-k}^r(\omega=e_{v,-k}) - \sum_{k'} V_{-k-k'} \\ &= \epsilon_{hk} + \sum_{k'} V_{s,-k-k'} n_{vk'} - \frac{1}{2} (V_s(r) - V(r))_{r \rightarrow 0} - \sum_{k'} V_{-k-k'} \\ &= \epsilon_{hk} - \sum_{k'} V_{s,-k-k'} n_{h,-k'} + \frac{1}{2} (V_s(r) - V(r))_{r \rightarrow 0}. \end{aligned} \quad (5.73)$$

Die Gleichungen (5.70) und (5.73) zeigen, daß die Theorie im Elektron-Loch-Bild völlig symmetrisch ist. Für die Renormierung der Bandlücke ergibt sich aus den Gleichungen (5.70) und (5.73) die Formel

$$E_g' = E_g - \sum_k V_{s,-k} (n_{ek} + n_{h,-k}) + (V_s(r) - V(r))_{r \rightarrow 0}. \quad (5.74)$$

In einem Elektron-Loch-Plasma erweist sich die Coulombloch-Selbstenergie in Gleichung (5.74) als der dominante Beitrag zur Bandkantenabsenkung (s. Abschnitt 7.4) [49].

5.6 Die Gleichung der optischen Polarisation in der quasistatischen Approximation

Setzt man das Ergebnis der quasistatischen Näherung der Elektronselbstenergie, Glg.

(5.64) und Glg. (5.67), in die Bewegungsgleichung (5.54) der Greenschen Funktionen G^{+-} ein, so erhält man für die optische Polarisation p_k ($(\rho\nu)=(c\nu)$) die Gleichung

$$i\dot{p}_k = (e_{ck} - e_{vk}) p_k - i \sum_{k'} \gamma_{k-k'} p_{k'} - (n_{vk} - n_{ck}) \left[\mu_k E_0(t) + \sum_{k'} V_{s,k-k'} p_{k'} \right] \quad (5.75)$$

mit

$$\gamma_{k-k'} = i \sum_{k''} V_{s,k-k''}^{+-} (\delta_{kk'} - \delta_{k'k''}). \quad (5.76)$$

Gegenüber der Hartree-Fock-Näherung der Gleichung der optischen Polarisation, Glg. (3.26), ist Gleichung (5.75) in verschiedener Hinsicht verbessert. Die anziehende Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern ist nun durch das abgeschirmte Coulombpotential V_s gegeben. Auch in die Renormierung der Einteilchenenergien (5.70) und (5.73) geht das Potential V_s ein. Als nichttriviale Korrektur der Einteilchenenergien ergab sich im Rahmen der quasistatischen Näherung der Coulombloch-Beitrag (5.67). Schließlich tritt in Gleichung (5.75) die Größe γ , Glg. (5.76) auf, die von den Streuprozessen der Ladungsträger herrührt.

Bei der Coulombstreuung der Teilchen handelt es sich um inkohärente Prozesse, die die Kohärenz von Polarisationsschwingungen vermindern. Deshalb sollte die Größe γ in Gleichung (5.75) eine Dämpfung der optischen Polarisation p_k bewirken. Nach einer Fouriertransformation $q \rightarrow r$ in den Ortsraum erhält man aus Gleichung (5.76)

$$\gamma(r) = iV_s^{+-}(r=0) - iV_s^{+-}(r). \quad (5.77)$$

Es zeigt sich (s. Glg. (6.9)), daß die Funktion $iV_s^{+-}(r)$ reell und positiv ist und ihr absolutes Maximum für $r=0$ annimmt. Die Größe $\gamma(r)$ ist folglich positiv und stellt somit wirklich eine Dämpfungskonstante dar.

Gleichung (5.75) wird verwendet, um die starken optischen Nichtlinearitäten zu beschreiben, die beim Mott-Übergang von Exzitonen in einem Elektron-Loch-Plasma auftreten [50]. Auch zur Berechnung der Spektren der optischen Verstärkung durch ein Elektron-Loch-Plasma ist Gleichung (5.75) geeignet [51]. In Abschnitt 7.5 werden einige Ergebnisse solcher Untersuchungen diskutiert.

Die quasistatische Approximation liefert bereits näherungsweise die bemerkenswerte Konstanz der spektralen Position der Exzitonresonanz. Hiervon kann man sich für den Fall niedriger Ladungsträgerdichten folgendermaßen überzeugen: Der wichtigste Beitrag zur Verschiebung der Einteilchenenergien ist die Coulombloch-Selbstenergie. In Gleichung (5.75) liefert sie den Beitrag

$$\sum_{\mathbf{k}'} \Delta V_{\mathbf{s}, \mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}}.$$

Vernachlässigt man für den Augenblick den Effekt der Phasenraumfüllung, so ist der Beitrag zu Gleichung (5.75), der von der Korrektur der Elektron-Loch-Anziehung herrührt, gegeben durch

$$- \sum_{\mathbf{k}'} \Delta V_{\mathbf{s}, \mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'}.$$

In der Summe beider Terme,

$$\sum_{\mathbf{k}'} \Delta V_{\mathbf{s}, \mathbf{k}-\mathbf{k}'} (p_{\mathbf{k}} - p_{\mathbf{k}'}), \quad (5.78)$$

kommt es zu einer weitgehenden Kompensation. Durch die Fouriertransformation $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{r}$ in den Ortsraum wird der Ausdruck (5.78) zu

$$(\Delta V_{\mathbf{s}}(r=0) - \Delta V_{\mathbf{s}}(r)) p(r). \quad (5.79)$$

Für kleine Elektron-Loch-Abstände r , die zur optischen Polarisation gebundener Zustände am stärksten beitragen, ist die Kompensation im Ausdruck (5.79) beinahe vollständig. Folglich ist die zugehörige Korrektur zur Exzitonenergie klein. In Abschnitt 7.4 wird dies in einer störungstheoretischen Untersuchung explizit gezeigt. Kompensationen großer Einzelbeiträge wie im Ausdruck (5.79) sind in der Theorie von Exzitonen typisch. Auf diese Weise kommt die Ladungsneutralität von Elektron-Loch-Paaren zum Ausdruck. Dies verdeutlicht auch, wie genau die Vielteilchentheorie eines Systems von Elektron-Loch-Paaren formuliert werden muß. Fehlt beispielsweise im Ausdruck (5.79) der Coulomblohn-Beitrag, so wird das Ergebnis völlig unrichtig.

6. ABSCHIRMUNG UND STREUUNG IN EINEM ELEKTRON-LOCH-PLASMA

In diesem Kapitel wird das dynamisch abgeschirmte Coulombpotential V_s und die Einteilchenselbstenergie der Ladungsträger eines Elektron-Loch-Plasmas berechnet. Dabei wird bezüglich der Abschirmung durch die longitudinal optischen Phononen zunächst in der ϵ_0 -Approximation verblieben. Anschließend wird von dieser Näherung abgegangen, um auch die gekoppelte Dynamik der Phononen und der Ladungsträger beschreiben zu können.

6.1 Die longitudinale dielektrische Funktion eines Elektron-Loch-Plasmas

In diesem Abschnitt wird die longitudinale dielektrische Funktion eines vollständig ionisierten Elektron-Loch-Plasmas angegeben. Dabei wird angenommen, daß sich unter den Ladungsträgern näherungsweise ein thermodynamisches Gleichgewicht eingestellt hat. Gerade für freie Ladungsträger ist diese Annahme aufgrund der großen Streuraten geladener Teilchen in vielen Fällen gerechtfertigt.

Man erhält die longitudinale dielektrische Funktion eines Vielteilchensystems, indem man seine Reaktion auf ein externes Potential $U_0(\mathbf{r},t)$ berechnet. Infolge der äußeren Störung kommt es zu Verschiebungen gebundener Ladungen und zu Anhäufungen freier Ladungsträger. Durch diese Störung der Ladungsträgerverteilung baut sich ein Coulombfeld auf, welches dem angelegten Feld entgegenwirkt. Das Gesamtpotential $U(\mathbf{r},t)$, das sich aus dem externen Feld und dem induzierten Coulombpotential der Ladungsträger zusammensetzt, ist folglich schwächer als das Potential U_0 . Man nennt das Gesamtpotential $U(\mathbf{r},t)$ das abgeschirmte Potential. In einer linearen Theorie, in der die externe Störung $U_0(\mathbf{r},t)$ als klein angenommen wird, besteht die Gesamtreaktion des Systems aus einer linearen Überlagerung seiner Reaktionen auf die einzelnen Fourierkomponenten $U_0(\mathbf{q},\omega)$. Der Quotient $\epsilon_L(\mathbf{q},\omega) = U_0(\mathbf{q},\omega)/U(\mathbf{q},\omega)$ definiert die longitudinale dielektrische Funktion ϵ_L . In derselben Weise, in der externe Felder abgeschirmt werden, wird auch die Coulombwechselwirkung der Teilchen untereinander vermindert. Die Funktion ϵ_L liefert deshalb auch das abgeschirmte Coulombpotential $V_{sq}(\omega) = V_{0q}/\epsilon_L(\mathbf{q},\omega)$.

In Abschnitt 10.1 wird auf die beschriebene Weise die dielektrische Funktion eines Systems kohärent getriebener Exzitonen berechnet. Für eine analoge Herleitung der dielektrischen Funktion eines Elektron-Loch-Plasmas möchte ich auf die bekannte Literatur verweisen [17, §7]. Stattdessen gebe ich an dieser Stelle den diagrammatischen Zugang zur dielektrischen Funktion an. Das abgeschirmte Coulombpotential genügt einer Dyson-Gleichung

$$V_s = V + V \Pi V_s \quad (6.1)$$

Die Selbstenergie $\Pi = \Pi_e + \Pi_h$ rührt von der dielektrischen Polarisation im System der Elektronen und Löcher her. Es soll hier die einfachste Approximation verwendet werden, die sich für die Größen Π_j einsetzen läßt:

$$\Pi \approx G_{ee} G_{ee} + G_{hh} G_{hh} \quad (6.2)$$

Da angenommen wird, daß sich das Elektron-Loch-Plasma im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, also nicht optisch polarisiert ist, wurden im Diagramm (6.2) nur Greensche Funktionen G_{ij} mit $i=j$ berücksichtigt. Die Näherung (6.2) ist bekannt unter der englischen Bezeichnung 'Random-Phase-Approximation' (RPA). Zu deutsch könnte man dies als die Näherung statistisch unabhängiger Phasen bezeichnen. Rechnerisch ergibt sich die RPA aus der Faktorisierung von Erwartungswerten von vier Fermioperatoren in Produkte $G_{ij} G_{jj}$ von Einteilchen-Greensfunktionen. Das bedeutet, daß die Teilchen für die Dauer der longitudinalen Polarisations-schwingung als unkorreliert behandelt werden. Bei der Faktorisierung der Erwartungswerte handelt es sich um Hartree-Zerlegungen. In Abschnitt 3.4 zeigte sich, daß sich die Hartree-Beiträge erster Ordnung zur Renormierung (3.28) der Einteilchenenergien aufgrund der Ladungsneutralität des Systems gegenseitig kompensieren. Die Abschirmungsprozesse, die nun berücksichtigt werden sollen, sind aber mit den lokalen Abweichungen von der Ladungsneutralität verbunden. Aufgrund der lokalen Coulombfelder existieren solche höheren Hartree-Beiträge und liefern auch die führenden Korrelationsbeiträge zur Selbstenergie (vgl. Glg. (10.15)). Korrekturen zur Polarisationsfunktion (6.2), die berücksichtigen, daß die Teilchen infolge des Pauliprinzip und infolge ihrer gegenseitigen Abschirmung auch während der Dauer der longitudinalen Polarisations-schwingungen korreliert sind, wurden zuerst von Hubbard angegeben [9, §5.5.C]. Bei diesen Erweiterungen der RPA spricht man von Lokalfeldkorrekturen. Das Diagramm (6.2) soll nun explizit berechnet werden. Es gilt

$$\Pi_{jq}^{\xi\xi'}(\omega) = -i\xi\xi' \sum_{\mathbf{k}s} \int \frac{d\omega'}{2\pi} G_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\xi\xi'}(\omega+\omega') G_{j\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(\omega'). \quad (6.3)$$

Das negative Vorzeichen in Gleichung (6.3) im Vergleich zur Gleichung (5.57) der Elektronen-selbstenergie resultiert nach den Feynman-Keldysh-Diagrammregeln [52; 53, §13]

daraus, daß Π_j eine geschlossene Fermionschleife darstellt. Der Ausdruck (6.3) soll in der Quasiteilchenapproximation (5.43) berechnet werden. Für die Funktion $\Pi_{j\mathbf{q}}^{+-}$ ergibt sich

$$\Pi_{j\mathbf{q}}^{+-}(\omega) = 2\pi i \sum_{\mathbf{k}s} f_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}} (1 - f_{j\mathbf{k}}) \delta(\omega + e_{j\mathbf{k}} - e_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}}). \quad (6.4)$$

Für die retardierte Polarisationsfunktion $\Pi_{j\mathbf{q}}^r$ findet man

$$\Pi_{j\mathbf{q}}^r(\omega) = \sum_{\mathbf{k}s} \frac{f_{j\mathbf{k}} - f_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{\omega + e_{j\mathbf{k}} - e_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}} + i\delta}. \quad (6.5)$$

Im Falle einer isotropen Bandstruktur läßt sich der Ausdruck (6.5) auf die nützliche Form

$$\Pi_{j\mathbf{q}}^r(\omega) = \sum_{\mathbf{k}s} f_{j\mathbf{k}} \frac{2(e_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - e_{j\mathbf{k}})}{(\omega + i\delta)^2 - (e_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - e_{j\mathbf{k}})^2} \quad (6.6)$$

bringen. Mit Hilfe der retardierten Polarisationsfunktion (6.5) läßt sich aus der Dyson-Gleichung (6.1) das retardierte abgeschirmte Coulombpotential berechnen zu

$$V_{s\mathbf{q}}^r(\omega) = \frac{V_{0\mathbf{q}}}{\epsilon_L(\mathbf{q},\omega)} \quad (6.7)$$

mit der longitudinalen dielektrischen Funktion

$$\epsilon_L(\mathbf{q},\omega) = \epsilon_0 - V_{0\mathbf{q}} \Pi_{\mathbf{q}}^r(\omega) \quad (6.8)$$

$$= \epsilon_0 \left[1 - V_{\mathbf{q}} \sum_{j\mathbf{k}s} \frac{f_{j\mathbf{k}} - f_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{\omega + e_{j\mathbf{k}} - e_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}} + i\delta} \right].$$

Gleichung (6.8) ist die bekannte Lindhard-Formel für die longitudinale dielektrische Funktion. Für die Funktion V_s^{+-} erhält man aus der Dyson-Gleichung (6.1)

$$V_{sq}^{+-}(\omega) = - \Pi_q^{+-}(\omega) |V_{sq}^r(\omega)|^2. \quad (6.9)$$

Das Ergebnis (6.9) läßt sich noch in eine sinnvollere Form bringen. Es gilt die Beziehung

$$f_{j,k+q} (1 - f_{jk}) = g(e_{j,k+q} - e_{jk}) (f_{jk} - f_{j,k+q}) \quad (6.10)$$

mit der Planck-Verteilung

$$g(\omega) = \frac{1}{e^{\beta\omega} - 1}. \quad (6.11)$$

Mit der Beziehung (6.10) folgt aus Gleichung (6.9) mit (6.4), (6.7) und (6.8)

$$iV_{sq}^{+-}(\omega) = g(\omega) A_{sq}(\omega) \quad (6.12)$$

mit der Spektralfunktion A_s des abgeschirmten Coulombpotentials

$$A_{sq}(\omega) = -2 \operatorname{Im} V_{sq}^r(\omega) \quad (6.13)$$

(vgl. Def. (5.8)). Das Auftreten der Planck-Verteilung $g(\omega)$ in Gleichung (6.12) zeigt, daß das abgeschirmte Coulombpotential Quasiteilchen beschreibt, die die Eigenschaften masseloser Bosonen besitzen (die thermische Verteilungsfunktion massiver Bosonen ist die Bose-Einstein-Verteilung, in die, wie in die Fermi-Verteilung (5.39), ein chemisches Potential eingeht [28, S. 162]). Zu den von der Spektralfunktion (6.13) beschriebenen Quasiteilchen zählen die sogenannten Plasmonen (s. Abschnitt 6.2). Mit Hilfe der Spektralfunktion A_s läßt sich für den retardierten Anteil ΔV_s^r des abgeschirmten Coulombpotentials eine Spektraldarstellung angeben:

$$\Delta V_s^r(\omega) = \int \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{A_{sq}(\omega')}{\omega - \omega' + i\delta}. \quad (6.14)$$

Nützlich sind ferner die Symmetriebeziehungen

$$\Delta V_{sq}^{\xi\xi'}(\omega) = \Delta V_{s,-q}^{\xi\xi'}(-\omega). \quad (6.15)$$

Die korrekte Einführung von Relaxationszeiten in die Lindhard-Formel (6.8) ist ein nichttriviales Problem, da man der Ladungsträgererhaltung Rechnung tragen muß. Die konsistente Berücksichtigung einer endlichen Stoßzeit γ führt zu der bekannten Lindhard-Mermin-Formel [54,55]:

$$\epsilon_L(\mathbf{q}, \omega) = \epsilon_0 - \frac{V_{0q} \Pi_q^r(\omega + i\gamma)}{1 - \Theta(\mathbf{q}, \omega)} \quad (6.16)$$

mit

$$\Theta(\mathbf{q}, \omega) = \frac{i\gamma}{\omega + i\gamma} \left[1 - \frac{\Pi_q^r(\omega + i\gamma)}{\Pi_q^r(0)} \right]. \quad (6.17)$$

In bestimmten Situationen muß von dieser gedämpften Form der dielektrischen Funktion Gebrauch gemacht werden. Zunächst wird die Diskussion aber für verschwindende Dämpfung $\gamma \rightarrow 0^+$ fortgesetzt.

6.2 Anregungsformen eines Elektron-Loch-Plasmas: Einteilchenanregungen und kollektive Schwingungen

Die Spektralfunktion A_q des abgeschirmten Coulombpotentials, Glg. (6.13), bestimmt das Anregungsspektrum des Elektron-Loch-Plasmas. Diese Funktion soll nun genauer untersucht werden. Dazu sei sie in der Form

$$A_{sq}(\omega) = V_q \frac{-2V_q \operatorname{Im} \Pi_q^r(\omega)}{(1 - V_q \operatorname{Re} \Pi_q^r(\omega))^2 + (V_q \operatorname{Im} \Pi_q^r(\omega))^2}, \quad (6.18)$$

geschrieben. Die Funktion im Zähler dieses Ausdrucks ist gegeben durch

$$- \operatorname{Im} \Pi_{j\mathbf{q}}^r(\omega) = \pi \sum_{\mathbf{k}s} (f_{j\mathbf{k}} - f_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}}) \delta(\omega + e_{j\mathbf{k}} - e_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}}). \quad (6.19)$$

Der Faktor der Besetzungszahlen in Gleichung (6.19) läßt sich auch schreiben als

$$f_{j\mathbf{k}} - f_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}} = f_{j\mathbf{k}} (1 - f_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - (1 - f_{j\mathbf{k}}) f_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}}. \quad (6.20)$$

Diese Schreibweise macht deutlich, daß die Funktion (6.19) proportional zur Netto-Streurate zwischen den Zuständen $|j\mathbf{k}\rangle$ und $|j,\mathbf{k}+\mathbf{q}\rangle$ ist. Die Deltafunktion in Gleichung (6.19) besagt, daß bei diesen Streuprozessen die Energie $\omega = e_{j,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - e_{j\mathbf{k}}$ aufgenommen bzw. abgegeben werden muß.

Zunächst soll der entartete Grenzfall $T=0\text{K}$ diskutiert werden. In diesem Fall bilden die Ladungsträger im Impulsraum, falls eine isotrope Bandstruktur vorliegt, die sogenannten Fermikugeln. Reelle Streuung eines Teilchens ist in dieser Situation aufgrund des Pauliprinzipis nur aus dem besetzten Inneren einer Fermikugel in ihre unbesetzte Umgebung möglich. Bei dieser Anregungsform eines Plasmas spricht man von Einteilchenanregungen. Die Funktion (6.19) ist für $T=0\text{K}$ für jeden Wellenvektor $\mathbf{q}$ nur in einem begrenzten Energieintervall von Null verschieden. Dieser ω -Bereich ist gegeben durch die Relation

$$\omega_{j\mathbf{q}}^- < |\omega| < \omega_{j\mathbf{q}}^+ \quad (6.21)$$

mit

$$\omega_{j\mathbf{q}}^\pm = \frac{(k_F \pm q)^2 - k_F^2}{2m_j} \quad (6.22)$$

und der Fermiwellenzahl

$$k_F = (3\pi^2 n)^{1/3}. \quad (6.23)$$

In Figur 6.1 ist dieser Energiebereich für Elektronen und Löcher gezeigt. Liegt der Energieübertrag ω innerhalb eines dieser Bereiche, so kann die reelle Streuung von Teilchen aus Zuständen $|j\mathbf{k}\rangle$ in Zustände $|j,\mathbf{k}+\mathbf{q}\rangle$ erfolgen. Man spricht hier von dem Kontinuum der Einteilchenanregungen des Plasmas.

Außerhalb des durch die Relation (6.21) gegebenen Energiebereichs wird die Spektralfunktion A_μ , Glg. (6.18), nicht etwa zu Null, sondern zu einer δ -Funktion:

$$A_{\mathbf{q}}(\omega) = 2\pi V_{\mathbf{q}} \delta(1 - V_{\mathbf{q}} \operatorname{Re} \Pi_{\mathbf{q}}^r(\omega)) \quad (6.24)$$

$$\text{für } \omega_{j\mathbf{q}}^+ < |\omega| \quad \text{oder} \quad \omega_{j\mathbf{q}}^- > |\omega|.$$

Zur Spektralfunktion (6.24) tragen die Lösungen $\omega = \Omega_{\mathbf{q}}$ der Gleichung

$$\epsilon_L(\mathbf{q}, \omega) = 0 \quad (6.25)$$

bei. Bei den Nullstellen der dielektrischen Funktion ϵ_L handelt es sich um die Frequenzen der longitudinalen Eigenschwingungen des Systems. Im Gegensatz zu den durch Gleichung (6.19) beschriebenen Anregungen einzelner Ladungsträger handelt es sich hier um kollektive Schwingungszustände des gesamten Plasmas. Ähnlich zu der Oszillation der Ionen in einer optischen Gitterschwingung gibt es im Plasma einen optischen Schwingungstyp, bei dem Elektronen und Löcher in Gegenphase oszillieren. Unter Umständen kann auch ein akustischer Schwingungstyp existieren, bei dem Elektronen und Löcher gleichsinnig schwingen [10, Glg. (3.23)]. Im Grenzfall großer Wellenlänge erhält man aus Gleichung (6.8) die bekannte Drude-Formel

$$\epsilon_L(\mathbf{q}=0, \omega) = \epsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega + i\delta)^2} \right) \quad (6.26)$$

mit

$$\omega_p = \left(\frac{4\pi n e^2}{\epsilon_0 m} \right)^{1/2}. \quad (6.27)$$

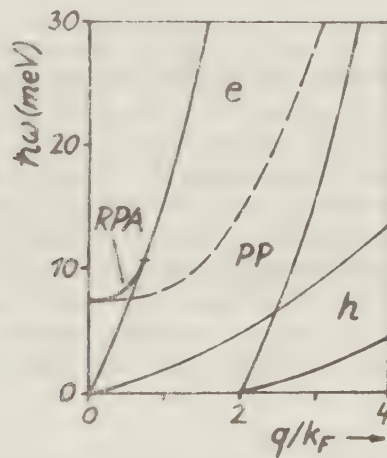
Aus Gleichung (6.25) und der Drude-Formel (6.26) folgt für die Frequenz der langwelligen optischen Plasmaschwingungen $\Omega_{\mathbf{q}=0} = \omega_p$. Die Größe ω_p heißt deshalb Plasmafrequenz. Diese Frequenz läßt sich auch auf einfachem Wege aus den klassischen Maxwell-Gleichungen herleiten [3, S. 318]. Man erhält dort für die dielektrische Polarisation die Gleichung eines harmonischen Oszillators, dessen Eigenfrequenz durch ω_p gegeben ist. Die Quanten der Plasmaschwingungen nennt man Plasmonen. Da sie die Quanten eines harmonischen Oszillators sind, handelt es sich um Bose-Teilchen. Hierdurch wird verständlich, weshalb das abgeschirmte Coulombpotential $V_{\mathbf{q}}$ die Eigenschaft (6.12) einer Boson-Greensfunktion besitzt.

In Figur 6.1 ist neben dem Kontinuum der Einteilchenanregungen auch die Dispersion der kollektiven Plasmonmode $\Omega_{\mathbf{q}}$ eingezeichnet. Es existiert eine kritische Wellenzahl q_c , bei der die Plasmamode in das Kontinuum der Einteilchenanregungen eindringt [56, §5.2].

Innerhalb des Einteilchenkontinuums ist die Plasmonresonanz $\text{Re}\epsilon_L=0$ in der Spektralfunktion (6.18) nur in gedämpfter Form vorhanden. In diesem Energiebereich zerfallen kollektive Anregungen in Einteilchenanregungen. Man spricht bei diesem Vorgang von der Landau-Dämpfung der Plasmaschwingungen. Dennoch bewirkt das kollektive Verhalten der Ladungsträger auch in diesem Frequenzbereich eine Verstärkung der Polarisierbarkeit des Plasmas. Man könnte hierbei von plasmonisch verstärkten Einteilchenanregungen sprechen, denn dieser Effekt besitzt eine gewisse Ähnlichkeit zur exzitonischen Verstärkung des transversalen Anregungsspektrums des Halbleiters bei der optischen Erzeugung freier Elektron-Loch-Paare (s. Abschnitt 3.5). Wie zur Berechnung der exzitonischen Verstärkung die Vielfachstreuung von Elektron und Loch berücksichtigt werden muß, ist auch zur Berechnung der Plasmonresonanz die ganze geometrische Reihe

$$V_s = V + V \Pi V + V \Pi V \Pi V + \dots \quad (6.28)$$

aufzusummieren. Nur für Frequenzen ω , die sehr verschieden von der Plasmafrequenz ω_p sind, genügt die erste Iteration in Gleichung (6.28), die lediglich das nackte Einteilchenkontinuum liefert.



Figur 6.1. Anregungsspektrum eines Elektron-Loch-Plasmas in GaAs für $T=0\text{K}$ und $n=3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ (entnommen aus [10]). Durchgezogen: die Dispersion der Plasmonmode Ω_q (RPA), gestrichelt: die Dispersion der effektiven Plasmonmode ω_q (PP) (s. Glg. (6.37)).

Für endliche Temperaturen verliert das Einteilchenkontinuum seine scharfen, durch die Relation (6.21) gegebenen Grenzen. Die Funktion (6.19) ist dann für alle endlichen Frequenzen von Null verschieden, und die Spektralfunktion (6.18) besitzt keinen völlig ungedämpften Anteil mehr. Ist aber die Plasmadichte n hinreichend groß, so daß

$\omega_p \gg k_B T$ gilt, so bleibt die Plasmonmode im langwelligen Grenzfall doch als wohldefinierte Anregungsform erhalten. Rechnerisch ist in diesem Fall die Plasmonresonanz in der Spektralfunktion (6.18) gewissermaßen hinter den Einteilchenstreuungen verborgen.

Neben der Landau-Dämpfung ist im Halbleiter auch der Zerfall von Plasmonen durch Intervallenzbandübergänge der Löcher möglich. Im langwelligen Grenzfall $q \rightarrow 0$ ist dies der dominante Dämpfungsmechanismus für kollektive Schwingungen [55]. Zur Berücksichtigung dieser Dämpfung der Plasmonen hat man die Lindhard-Mermin-Formel (6.16) zu verwenden. Für $q \rightarrow 0$ gilt nach Gleichung (6.16) und (6.17)

$$\epsilon_L(q=0, \omega) = \epsilon_0 \left[1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)} \right]. \quad (6.29)$$

Für $\gamma \rightarrow 0^+$ sind die Formeln (6.26) und (6.29) wertgleich.

6.3 Statische Abschirmung durch ein Elektron-Loch-Plasma

Um die Wirkungsweise der Abschirmung durch ein Elektron-Loch-Plasma zu verstehen, ist es sinnvoll, die longitudinale dielektrische Funktion $\epsilon_L(q, \omega)$, Glg. (6.8), im statischen Grenzfall $\omega=0$ zu betrachten. Dieser Grenzfall der dielektrischen Funktion geht in die quasistatische Näherung der Elektronenelbstenergie, Glg. (5.61), ein. An dieser Stelle soll ferner nur der langwellige Grenzfall $q \rightarrow 0$ betrachtet werden, was für quantitative Berechnungen allerdings meist nicht ausreichend ist. Aus Gleichung (6.8) folgt für $\omega=0$ und für kleine Werte von q

$$\epsilon_L(q \rightarrow 0, \omega=0) = \epsilon_0 \left[1 + \frac{\kappa^2}{q^2} \right]. \quad (6.30)$$

Hierin ist κ die sogenannte Abschirmwellenzahl,

$$\kappa = \left[\frac{4\pi e^2}{\epsilon_0} \sum_j \frac{\partial n_j}{\partial \mu_j} \right]^{1/2}. \quad (6.31)$$

Die Divergenz der dielektrischen Funktion (6.30) für $q \rightarrow 0$ bedeutet, daß das metallische Elektron-Loch-Plasma langwellige, statische Felder vollständig abschirmen kann. In Abschnitt 10.1 wird gezeigt, daß die dielektrische Abschirmung durch gebundene Elektron-Loch-Paare wesentlich weniger wirksam ist. Für das abgeschirmte Coulombpotential $V_{sq} = V_{sq}^r (\omega=0)$, Glg. (6.7), ergibt sich mit Gleichung (6.30)

$$V_{s,q \rightarrow 0} = \frac{4\pi e^2}{\epsilon_0 (q^2 + \kappa^2)}. \quad (6.32)$$

Da die dielektrische Funktion (6.30) im Grenzfall langer Wellen $\propto q^{-2}$ divergiert, bleibt das Coulombpotential (6.32) für $q \rightarrow 0$ endlich. Das bedeutet, daß die Reichweite des Coulombpotentials einer Ladung infolge der Abschirmung durch ein Elektron-Loch-Plasma wesentlich verringert ist. Nach Fouriertransformation $q \rightarrow r$ in den Ortsraum resultiert aus Gleichung (6.32) das sogenannte Yukawa-Potential

$$V_s(r) = V(r) e^{-\kappa r}. \quad (6.33)$$

An dieser Formel wird erkennbar, daß die Größe κ^{-1} die Bedeutung einer Abschirmlänge besitzt. Mit Hilfe des Yukawa-Potentials (6.33) läßt sich eine Näherungsformel für die Absenkung der Bandkante in Anwesenheit eines Elektron-Loch-Plasmas angeben. Für den Coulombloch-Anteil der Renormierung der Energielücke E_g , Glg. (5.74), ergibt sich mit Gleichung (6.33), ausgedrückt in exzitonischen Einheiten,

$$\begin{aligned} \Delta E_g^{\text{ch}} &= (V_s(r) - V(r))_{r \rightarrow 0} \\ &= -2\kappa a_0 E_0. \end{aligned} \quad (6.34)$$

Dies ist die sogenannte Debye-Verschiebung der Bandkante. Die Formel (6.34) erlaubt eine erste Abschätzung der Plasmadichte, bei der der Mott-Übergang von Exzitonen, die sich in einem Elektron-Loch-Plasma befinden, erfolgt. Dies sollte der Fall sein, sobald die Absenkung (6.34) der Bandlücke den Wert der Exzitonbindungsenergie annimmt, also für

$$2\kappa a_0 \simeq 1. \quad (6.35)$$

Die Relation (6.35) liefert bereits die richtige Größenordnung für den Wert der Mottdichte. Sie besagt, daß gebundene Zustände aufhören zu existieren, sobald die Abschirmlänge κ^{-1} den Durchmesser der Exzitonen zu unterschreiten beginnt. Bei tiefen Ladungsträgertemperaturen $T \ll E_0/k_B$, bei denen keine freien Elektron-Loch-Paare vorliegen und somit nur die schwache dielektrische Abschirmung der Exzitonen wirksam

ist, liegt die Mottdichte in der Größenordnung von $n \approx a_0^{-3}$. Mit diesem Kriterium erhält man für die Mottdichte wesentlich höhere Werte als mit dem Kriterium (6.35).

6.4 Die Plasmonpol-Approximation

Für praktische Berechnungen ist die Lindhard-Formel für die longitudinale dielektrische Funktion, Glg. (6.8), etwas kompliziert. Aus diesem Grund hat man eine Formel konstruiert, die bedeutend einfacher ist als die Lindhard-Formel, die aber doch die wesentlichen Eigenschaften dieser Funktion besitzt. Nach Gleichung (6.26) bilden im langwelligen Grenzfall die Plasmonen die einzige Anregungsform des Elektron-Loch-Plasmas. Auch für endliche q -Werte verbleibt ein großer Teil des spektralen Gewichtes in der kollektiven Schwingungsmode. Eine geeignete Näherung besteht deshalb darin, das gesamte Anregungsspektrum des Plasmas durch eine einzige 'effektive' Plasmonmode zu ersetzen. Dieses Konzept führt auf die einfache Formel

$$\epsilon_L(q, \omega) = \epsilon_0 \left[1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega + i\delta)^2 + \omega_p^2 - \omega_q^2} \right] \quad (6.36)$$

Die Näherung (6.36) für die dielektrische Funktion heißt Plasmonpol-Approximation [57]. Die Dispersion der effektiven Plasmonmode ω_q ist gegeben durch

$$\omega_q^2 = \omega_p^2 \left[1 + \frac{q^2}{\kappa^2} \right] + \frac{q^4}{16m^2} \quad (6.37)$$

Diese Dispersion ist so gewählt, daß die Näherung (6.36) sowohl den langwelligen Grenzfall (6.26) als auch den statischen Grenzfall (6.30), der für kleine Werte von q gilt, korrekt wiedergibt. Ferner erfüllt die Plasmonpol-Approximation einige wichtige Summenregeln (s.u.). Figur 6.1 auf Seite 99 zeigt, daß die effektive Mode (6.37) unterhalb der tatsächlichen Plasmonmode Ω_q verläuft. Das Verhalten von ω_q für große Wellenzahlen q ist durch den q^4 -Term in Gleichung (6.37) bestimmt. Dieser Term ist hier so gewählt, daß die Mode ω_q für große Werte von q in der Mitte zwischen den Einteilchenkontinua der Elektronen und der Löcher verläuft. In der Plasmonpolnäherung ist die Spektralfunktion (6.13) des abgeschirmten Coulombpotentials gegeben durch

$$A_{sq}(\omega) = V_q \frac{\omega_p^2}{2\omega_q} 2\pi [\delta(\omega - \omega_q) - \delta(\omega + \omega_q)]. \quad (6.38)$$

Die Funktion (6.38) ist als Spektralfunktion bosonartiger Anregungen antisymmetrisch bezüglich der Frequenz ω . Ein Maß für das spektrale Gesamtgewicht bosonartiger Anregungen ist das Frequenzintegral über die Funktion $\omega A(\omega)$:

$$\int \frac{d\omega}{2\pi} \omega A_{sq}(\omega) = V_q \omega_p^2. \quad (6.39)$$

Bei dieser Beziehung handelt es sich um eine exakte Eigenschaft der dielektrischen Funktion ϵ_L . Man nennt Gleichung (6.39) die longitudinale f-Summenregel. Der Buchstabe f bezeichnet die Oszillatorstärke der Eigenschwingungen im Anregungsspektrum. Nach Gleichung (6.39) ist die integrale Oszillatorstärke des longitudinalen Anregungsspektrums proportional zur Plasmadichte n. Neben der Beziehung (6.39) erfüllt die Plasmonpol-Approximation (6.36) noch einige weitere wichtige Summenregeln für ϵ_L [12, Glg. (4.8)].

Um realistische Ergebnisse zu erhalten, ist es oftmals notwendig, in Gleichung (6.36) eine Dämpfungskonstante einzuführen, die die endliche Lebensdauer der Plasmonen infolge von Intervallenzbandübergängen der Löcher und infolge der Landau-Dämpfung berücksichtigt. Durch die einfache Ersetzung $\delta=0^+ \rightarrow \Gamma > 0$ in Gleichung (6.36) würde die Eigenschaft

$$[\epsilon_L(\mathbf{q} \rightarrow 0, \omega=0)]^{-1} = 0 \quad (6.40)$$

(vgl. Glg. (6.30)) zerstört werden, die zum Ausdruck bringt, daß das Elektron-Loch-Plasma langwellige statische Störungen vollständig abschirmen kann. Man hat deshalb in Gleichung (6.36) eine Dämpfungskonstante Γ_q in der Form

$$\epsilon_L(\mathbf{q}, \omega) = \epsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega + i\Gamma_q)^2 + \omega_p^2 - \omega_q^2} \right). \quad (6.41)$$

eingeführt. Hierin tritt infolge der Dämpfung eine etwas verschobene Plasmondispersion auf,

$$\omega_q'^2 = \omega_q^2 - \Gamma_0^2. \quad (6.42)$$

Für die q -Abhängigkeit der Dämpfungskonstanten Γ_q wird der Ansatz

$$\Gamma_q^2 = \Gamma_0^2 + \frac{q^4}{16m^2} \quad (6.43)$$

verwendet. Die Größe Γ_0 berücksichtigt die Plasmondämpfung durch Intervenzbandübergänge der Löcher, und der q^4 -Term in Gleichung (6.43) soll die Landau-Dämpfung erfassen. Mit Gleichung (6.41) lautet die gedämpfte Form der Drude-Formel (6.26)

$$\epsilon_L(q=0, \omega) = \epsilon_0 \left[1 - \frac{\omega_p^2}{\omega (\omega + 2i\Gamma_0)} \right]. \quad (6.44)$$

Der Ausdruck (6.44) stimmt für $\gamma=2\Gamma_0$ mit dem langwelligen Grenzfall (6.29) der Lindhard-Mermin-Formel überein. Die Berücksichtigung der Dämpfung in der Form

$$(\omega + i\delta)^2 \hat{=} \omega (\omega + i\delta) \rightarrow \omega (\omega + i\gamma) \quad (6.45)$$

entspricht gerade dem Stokesschen Ansatz für Reibung in der klassischen Newton-Gleichung

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{d}{dt} - \gamma \right) x = \frac{K}{m}. \quad (6.46)$$

Da im statischen Grenzfall keine Reibung stattfindet, wäre gegenüber Gleichung (6.41) eine Form von ϵ_L vorzuziehen, die für $\omega=0$ auch für endliche q -Werte nicht von Dämpfungstermen abhängt. Die Lindhard-Mermin-Formel (6.16) erfüllt diese Forderung.

6.5 Dynamische Abschirmung durch Plasmonen und Phononen

Bisher wurde der Beitrag der longitudinal optischen Phononen zur dielektrischen Funktion im Rahmen der ϵ_0 -Approximation berücksichtigt. Dies ist die Näherung statischer (genauer: instantaner) Abschirmung durch LO-Phononen. Für hohe Plasmadichten, wenn die Plasmafrequenz ω_p in die Größenordnung der Frequenz ω_L der LO-Phononen kommt, kann nicht mehr angenommen werden, daß die Phononen die schnellsten Variablen des Systems sind. In diesem Fall muß von der ϵ_0 -Approximation abgegangen werden.

In Abschnitt 3.3 wurde die statische dielektrische Konstante ϵ_0 als niederfrequenter Grenzwert der dielektrischen Funktion ϵ_{ph} , Glg. (3.18), eingeführt. Folglich ist nun die Rückersetzung $\epsilon_0 \rightarrow \epsilon_{ph}(\omega)$ vorzunehmen. Damit gelangt man von der Plasmonpol-Approximation (6.36) zur Plasmon-Phononpol-Approximation

$$\epsilon_L(q, \omega) = \epsilon_\infty \left[1 - \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{(\omega + i\delta)^2 - \omega_T^2} - \frac{\omega_p^2}{(\omega + i\delta)^2 + \omega_p^2 - \omega_q^2} \right]. \quad (6.47)$$

In die Größen ω_p , ω_q und κ geht nun, da die Phononen hier explizit behandelt werden, die Konstante ϵ_∞ anstelle von ϵ_0 ein. Für die Spektralfunktion A_s des abgeschirmten Coulombpotentials erhält man nun anstelle von Gleichung (6.38) die Formel

$$A_{sq}(\omega) = V_q \sum_{\rho=\pm} \frac{f_{\rho q}}{2\omega_{\rho q}} 2\pi [\delta(\omega - \omega_{\rho q}) - \delta(\omega + \omega_{\rho q})], \quad (6.48)$$

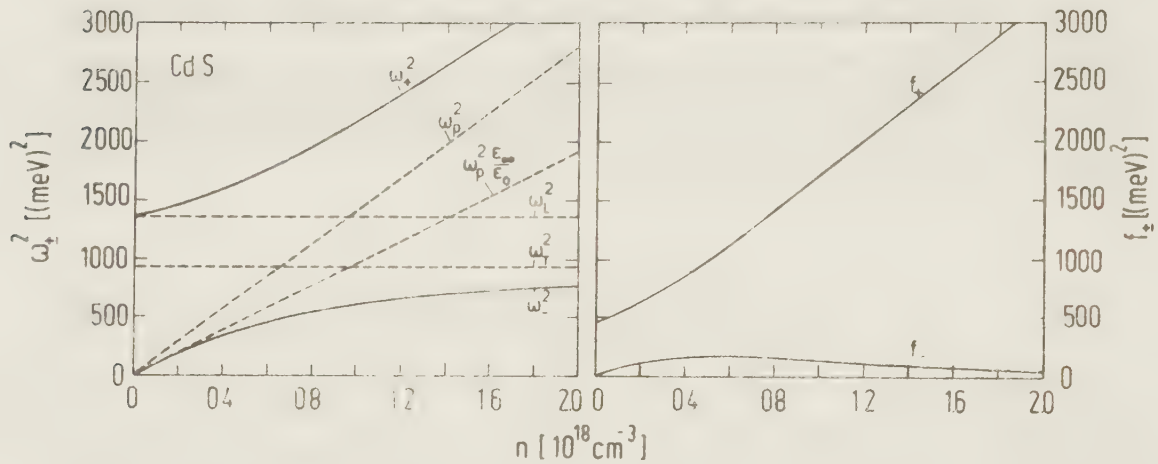
wobei das nackte Coulombpotential V jetzt ebenfalls mit ϵ_∞ zu bilden ist. Die Frequenzen $\omega_{\pm q}$ in Gleichung (6.48) sind die durch die Bedingung (6.25) definierten Frequenzen der longitudinalen Eigenschwingungen des Systems. Bei diesen Eigenmoden handelt es sich nun um die gekoppelten Schwingungen der Plasmonen und der Phononen:

$$\omega_{\pm q}^2 = \frac{1}{2} (\omega_L^2 + \omega_q^2) \pm \frac{1}{2} \sqrt{(\omega_L^2 - \omega_q^2)^2 + 4 \omega_p^2 (\omega_L^2 - \omega_T^2)}. \quad (6.49)$$

Die spektralen Gewichte $f_{\pm q}$ in Gleichung (6.48) sind gegeben durch

$$f_{\pm q} = \frac{\omega_{\pm q}^2 (\omega_p^2 + \omega_L^2 - \omega_T^2) - \omega_{+q}^2 \omega_{-q}^2 - \omega_T^2 (\omega_p^2 - \omega_q^2)}{\omega_{\pm q}^2 - \omega_{\mp q}^2}. \quad (6.50)$$

Figur 6.2a zeigt am Beispiel von Cadmiumsulfid (s. Abschnitt 8.8) die Frequenzen $\omega_{\pm}$, Glg. (6.49), als Funktion der Plasmadichte n im langwelligigen Grenzfall $q \rightarrow 0$.



Figur 6.2. Dichteabhängigkeit a) der Frequenzen $\omega_{\pm}$ und b) der Oszillatorstärken $f_{\pm}$ der Plasmon-Phonon-Moden in CdS.

Für niedrige Dichten sind die Frequenzen von Plasmonen und Phononen sehr verschieden, und ihre Kopplung ist dementsprechend schwach. In diesem Bereich sind die Eigenfrequenzen $\omega_{\pm}$ näherungsweise gegeben durch

$$\omega_{+}^2 \simeq \omega_L^2, \quad (6.51a)$$

$$\omega_{-}^2 \simeq \frac{\epsilon_{\infty}}{\epsilon_0} \omega_p^2 = \frac{4\pi n e^2}{\epsilon_0 m}. \quad (6.51b)$$

Der Ausdruck (6.51b) liefert die Plasmafrequenz in der ϵ_0 -Approximation, Glg. (6.27). Im

Grenzfall niedriger Plasmadichte ist also der "+"-Ast der Dispersionsrelation (6.49) rein phononartig, während der "-"-Ast rein plasmonartig ist. Mit zunehmender Dichte wird die Kopplung der Phononen und Plasmonen stärker. Liegen die Frequenzen ω_L und ω_p in derselben Größenordnung, so besitzen beide Moden $\rho=\pm$ gemischten Plasmon-Phonon-Charakter. In diesem Dichtebereich zeigt Figur 6.2a die typische Abstoßung und Aufhebung der Entartung gekoppelter Energieniveaus. Für hohe Dichten nimmt die Stärke der Kopplung zwischen Phononen und Plasmonen wieder ab. Nun ist der "-"-Ast phononartig, und der "+"-Ast ist plasmonartig. Die Eigenfrequenzen $\omega_{\pm}$ sind jetzt näherungsweise gegeben durch

$$\omega_+^2 \simeq \omega_p^2 = \frac{4\pi n e^2}{\epsilon_{\infty} m}, \quad (6.52a)$$

$$\omega_-^2 \simeq \frac{\epsilon_{\infty}}{\epsilon_0} \omega_L^2 = \omega_T^2. \quad (6.52b)$$

Bei niedriger Plasmadichte werden gemäß Gleichung (6.51b) die Plasmonen instantan durch die Phononen abgeschirmt. Bei hoher Plasmadichte verhält es sich umgekehrt: nun können die Phononen den Plasmonen nicht mehr folgen, d.h. die Phononen werden durch die Plasmonen abgeschirmt. Für hohe Dichten ist deshalb die Plasmonfrequenz, Glg. (6.52a), mit ϵ_{∞} zu bilden, und die nackte Phononfrequenz ω_L ist durch die Frequenz ω_T abgeschirmter Phononen, Glg. (6.52b), zu ersetzen.

Figur 6.2b zeigt die Oszillatorstärken $f_{\pm}$, Glg. (6.50), als Funktion der Plasmadichte n im langwelligen Grenzfall $q \rightarrow 0$. Für niedrige Plasmadichten erhält man mit Glg. (6.51)

$$f_+ \simeq \omega_L^2 - \omega_T^2, \quad (6.53a)$$

$$f_- \simeq \frac{\epsilon_{\infty}^2}{\epsilon_0^2} \omega_p^2 = \frac{\epsilon_{\infty}}{\epsilon_0} \frac{4\pi n e^2}{\epsilon_0 m}. \quad (6.53b)$$

In diesem Grenzfall folgt für die Spektralfunktion A_s , Glg. (6.48),

$$A_{sq}(\omega) = |g_q|^2 \cdot 2\pi [\delta(\omega - \omega_L) - \delta(\omega + \omega_L)] \quad (6.54)$$

$$+ \hat{\gamma}_q \frac{\hat{\omega}_p^2}{2\hat{\omega}_q} \cdot 2\pi [\delta(\omega - \hat{\omega}_q) - \delta(\omega + \hat{\omega}_q)].$$

In dieser Gleichung sind die mit einem Dach gekennzeichneten Größen die Größen aus

der ϵ_0 -Approximation,

$$\hat{V}_q = \frac{\epsilon_\infty}{\epsilon_0} V_q, \quad \hat{\omega}_p^2 = \frac{\epsilon_\infty}{\epsilon_0} \omega_p^2, \quad \hat{\omega}_q^2 = \frac{\epsilon_\infty}{\epsilon_0} \omega_q^2, \quad (6.55)$$

und g_q ist das durch Gleichung (3.15) definierte Matricelement der Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Gleichung (6.54) zeigt, daß die Beiträge der Phononen und der Plasmonen zur Spektralfunktion für niedrige Plasmadichten voneinander entkoppeln. Die erste Zeile in Gleichung (6.54) ist gerade die mit dem Absolutquadrat des Matricelementes g_q multiplizierte Spektralfunktion der Phononen [58, §92, S. 428]. Die zweite Zeile in Gleichung (6.54) ist genau die Spektralfunktion des abgeschirmten Coulombpotentials in der ϵ_0 -Approximation, Glg. (6.38). Durch Gleichung (6.54) wird deutlich, daß man im Rahmen der ϵ_0 -Approximation zwar die Abschirmung (6.55) der Größen V , ω_p und ω_q durch die Phononen berücksichtigt, nicht aber den durch die erste Zeile in Gleichung (6.54) gegebenen dynamischen Korrelationsanteil der Phononen. Die Vernachlässigung dieses Anteils der Spektralfunktion scheint möglich zu sein, sofern die relevanten Energien der Ladungsträger klein sind gegen die Phononfrequenz ω_L . In Abschnitt 6.6 wird aber erkennbar werden, daß dies streng genommen nicht zutrifft, denn die erste Zeile in Gleichung (6.54) liefert gerade den Polaroneffekt.

Nun sei noch der entgegengesetzte Grenzfall hoher Plasmadichte n betrachtet. Für die Oszillatorstärken (6.50) folgt dann mit Gleichung (6.52)

$$f_+ \simeq \omega_p^2, \quad (6.56a)$$

$$f_- \simeq \frac{\omega_T^2 [(\omega_L^2 - \omega_T^2)^2 + \omega_T^4]}{2\omega_p^4} = \alpha(n^{-2}). \quad (6.56b)$$

Für hohe Dichten ist die Spektralfunktion A_s folglich allein durch die Plasmonen bestimmt,

$$A_{sq}(\omega) = V_q \frac{\omega_p^2}{2\omega_q} 2\pi [\delta(\omega - \omega_q) - \delta(\omega + \omega_q)]. \quad (6.57)$$

Dies ist also der eigentliche Gültigkeitsbereich der Plasmonpol-Approximation. Man beachte allerdings, daß in Gleichung (6.57) die dielektrische Konstante ϵ_∞ zu verwenden ist. Für hohe Ladungsträgerdichten werden die Phononen durch das Plasma vollständig abgeschirmt und tragen deshalb selbst nicht mehr zur Abschirmung bei.

Zur Berücksichtigung der endlichen Lebensdauer der gekoppelten Plasmon-Phonon-Moden ist es vorteilhaft und physikalisch sinnvoll, nicht bereits in der dielektrischen Funktion (6.47) Stoßzeiten zu berücksichtigen, sondern zuerst die Zerlegung der Funktion

ϵ_L^{-1} in die Beiträge der Normalschwingungen $\omega_{\pm}$ vorzunehmen. Mit Hilfe der Spektraldarstellung (6.14) folgt

$$\epsilon_L^{-1}(\mathbf{q}, \omega) = \epsilon_{\infty}^{-1} \left[1 + \sum_{\rho=\pm} \frac{f_{\rho\mathbf{q}}}{(\omega + i\delta)^2 - \omega_{\rho\mathbf{q}}^2} \right]. \quad (6.58)$$

Hier kann die Dämpfung im einfachsten Fall wie in Gleichung (6.29) nach dem Schema $(\omega + i\delta)^2 \rightarrow \omega(\omega + i\gamma_{\pm})$ eingeführt werden.

In Abschnitt 8.8 wird die gedämpfte Form der Spektralfunktion (6.48) zur Berechnung des Einflusses von Plasmon-Phonon-Moden auf die Spektren der optischen Verstärkung durch ein Elektron-Loch-Plasma verwendet werden.

6.6 Die Einteilchenselbstenergie

In Abschnitt 5.4, Glg. (5.57), wurde der Korrelationsanteil der Elektronen selbstenergie in der abgeschirmten Hartree-Fock-Näherung angegeben. Dieser Ausdruck soll nun für den Fall eines Elektron-Loch-Plasmas, das sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, ausgewertet werden.

Nach Abschnitt 5.2 genügt es für Gleichgewichtssysteme bereits, nur eine der Selbstenergien Σ^{el} oder beispielsweise die retardierte Selbstenergie Σ^r zu bestimmen. Aus Gleichung (5.57) folgt mit den Beziehungen (5.9) und (5.25) im Elektron-Loch-Bild ($j=e,h$) und nach Fouriertransformation $\mathbf{r} \rightarrow \omega$

$$\Sigma_{jj\mathbf{k}}^{Cr}(\omega) = i \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi} (\Delta V_{e,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^r(\omega-\omega') G_{jj\mathbf{k}'}^{+-}(\omega') + V_{e,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+-}(\omega-\omega') G_{jj\mathbf{k}'}^r(\omega')). \quad (6.59)$$

Zur Auswertung dieser Formel soll die Quasiteilchenapproximation (5.43) der Greenschen Funktionen G verwendet werden. Mit Hilfe der Beziehung (6.12) und der Spektraldarstellung (6.14) folgt dann

$$\Sigma_{jj\mathbf{k}}^{Cr}(\omega) = - \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi} A_{e,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}(\omega') \frac{f_{j\mathbf{k}'} + g(-\omega')}{\omega - \omega' - e_{j\mathbf{k}'} + i\delta}. \quad (6.60)$$

Bis heute existiert keine vollständige Lösung der Dyson-Gleichung eines optisch polarisierten Halbleiters, Glg. (5.54), unter Berücksichtigung dynamischer Korrelationseffekte. Gleichung (6.60) für die dynamische Renormierung der Einteilchenenergien wurde aber eingehend untersucht, denn aufgrund der experimentell gesicherten Konstanz der Energie der Exzitonresonanz genügt bereits eine zuverlässige Theorie der Verschiebung der Bandkante E_g , um die Mottsdichte angeben zu können [10, §3.1]. Hierzu berechnet man nach Gleichung (5.31) die Quasiteilchenenergien

$$\begin{aligned} e_{jk} &= \epsilon_{jk} + \Sigma_{jjk}^{HF} + \text{Re } \Sigma_{jjk}^{Cr}(e_{jk}) \\ &= \epsilon_{jk} - \sum_{k'} V_{kk'} f_{jk'} - \sum_{k'} P \int \frac{d\omega'}{2\pi} A_{s,k-k'}(\omega') \frac{f_{jk'} + g(-\omega')}{e_{jk} - e_{jk'} - \omega'}. \end{aligned} \quad (6.61)$$

Der Imaginärteil der Korrelationsselbstenergie (6.60) liefert die Lebensdauerverbreiterung Γ_{jjk} , Glg. (5.33), der Blochzustände:

$$\begin{aligned} \Gamma_{jjk} &= - \text{Im } \Sigma_{jjk}^{Cr}(e_{jk}) \\ &= \sum_{k'} \text{Im } V_{s,k-k'}(e_{jk} - e_{jk'}) (f_{jk'} + g(e_{jk'} - e_{jk})). \end{aligned} \quad (6.62)$$

Mit den Gleichungen (6.61) und (6.62) kann zunächst die Energierenormierung und die Stoßverbreiterung berechnet werden, die von der Elektron-Phonon-Wechselwirkung allein hervorgerufen wird. Für niedrige Plasmadichten ist die Näherung (6.54) der Spektralfunktion A_s verwendbar, in der die Beiträge von Plasmonen und Phononen entkoppelt sind. An dieser Stelle soll für den Augenblick sogar verschwindende Plasmadichte angenommen werden. In Gleichung (6.60) ist dann $f_{jk}=0$ zu setzen, und die Spektralfunktion A_s des abgeschirmten Coulombpotentials reduziert sich zu

$$A_{sq}(\omega) = |g_q|^2 \cdot 2\pi [\delta(\omega - \omega_L) - \delta(\omega + \omega_L)]. \quad (6.63)$$

Offensichtlich wertet man in diesem Fall mit Gleichung (6.60) gerade die Elektron-Phonon-Selbstenergie


(6.64)

aus. Bei einer Auswertung in höherer störungstheoretischer Ordnung tritt im Diagramm (6.64) anstelle der nackten Phonon-Greensfunktion D_0 die renormierte Greensche Funktion D der Phononen auf. Ferner ist einer der Vertizes g durch eine allgemeinere Vertexfunktion zu ersetzen [59]. Auf diese Weise geht die Mehrfachstreuung von Ladungsträgern mit Phononen ein. Für den augenblicklichen Zweck genügt aber die Selbstenergie (6.64). Die Spektralfunktion (6.63) eingesetzt in Gleichung (6.60) ergibt

$$\Sigma_{jjk}^{C_r}(e_{jk}) = \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 \left[\frac{1 + g(\omega_L)}{e_{jk} - e_{jk-\mathbf{q}} - \omega_L + i\delta} + \frac{g(\omega_L)}{e_{jk} - e_{jk-\mathbf{q}} + \omega_L + i\delta} \right]. \quad (6.65)$$

Eine Ladung ruft bei ihrer Bewegung durch einen polaren Kristall eine Deformation des Kristallgitters hervor, die man als eine Wolke virtueller optischer Phononen auffassen kann. Durch die Ausbildung dieser Polarisationswolke gewinnt das System Energie, was sich in einer Absenkung der Einteilchenenergien der Ladungsträger äußert. Dieser Effekt besitzt Ähnlichkeit zur Ausbildung des Coulombbloches in einem Vielteilchensystem von Ladungsträgern (s. Abschnitt 5.5). Das Quasiteilchen, das sich aus einer Ladung zusammen mit der von ihr hervorgerufenen Gitterdeformation zusammensetzt, nennt man Polaron. Der Realteil des Ausdrucks (6.65) liefert die Änderung der Einteilchenenergien der Ladungsträger aufgrund des Polaroneffektes. Bei tiefen Kristalltemperaturen $k_B T \ll \omega_L$ verschwinden die Phononbesetzungszahlen $g(\omega_L)$ in Gleichung (6.65). Dann erhält man für die renormierte Bandlücke E'_g die Formel

$$\begin{aligned} E'_g &= E_g - \sum_{j\mathbf{q}} \frac{|g_{\mathbf{q}}|^2}{\omega_L + e_{j\mathbf{q}}} \\ &= E_g - \sum_j \alpha_j \omega_L. \end{aligned} \quad (6.66)$$

Der Ausdruck (6.66) ist die sogenannte Polaron-Energielücke. Die Größen α_j sind die Polaron-Kopplungskonstanten

$$\alpha_j = \frac{e^2}{2\epsilon^* \omega_L} \sqrt{2m_j \omega_L}. \quad (6.67)$$

Die Mitnahme der Phononbesetzungszahlen $g(\omega_L)$ in Gleichung (6.65) liefert die Verringerung der Bandlücke mit zunehmender Kristalltemperatur [60, §7]. Da sich ein Kristall bei der Bestrahlung mit Laserlicht erwärmt, läßt sich auch die Reduktion der Bandlücke mit zunehmender Temperatur als optisch nichtlinearer Mechanismus verwenden. Thermische Nichtlinearitäten sind allerdings vergleichsweise langsam gegenüber den Nichtlinearitäten, die durch die Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren bewirkt werden.

Neben der Verschiebung der Bandkante resultiert aus Gleichung (6.65) auch eine Renormierung der effektiven Massen der Ladungsträger. Aufgrund der Trägheit der Polarisationswolken, die sich um die Ladungsträger bilden, ist die effektive Masse von Polaronen größer als die der nackten Elektronen und Löcher.

Der Imaginärteil der Selbstenergie (6.65) liefert für die Stoßverbreiterung $\Gamma_{j\mathbf{k}}$, Glg. (6.62), die Formel

$$\begin{aligned} \Gamma_{j\mathbf{k}} = \pi \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 [(1 + g(\omega_L)) \delta(e_{j\mathbf{k}} - e_{j\mathbf{k}-\mathbf{q}} - \omega_L) \\ + g(\omega_L) \delta(e_{j\mathbf{k}} - e_{j\mathbf{k}-\mathbf{q}} + \omega_L)]. \end{aligned} \quad (6.68)$$

Die Größe (6.68) ist der Beitrag der longitudinal optischen Phononen zur inelastischen Streurate eines Elektrons vom Zustand $|j\mathbf{k}\rangle$ in Zustände $|j, \mathbf{k}-\mathbf{q}\rangle$. Der erste Term in Gleichung (6.68) beschreibt Streuung unter spontaner ($\propto 1$) oder stimulierter ($\propto g(\omega_L)$) Emission eines Phonons. Der zweite Term beschreibt die Streuung unter Phononabsorption. Für tiefe Temperaturen verbleibt in Gleichung (6.68) nur die Streuung unter spontaner Phononemission. Da dieser Streuprozess nur ablaufen kann, falls $e_{j\mathbf{k}} > \omega_L$ gilt, verschwindet für $T=0\text{K}$ die Streurate für Einteilchenzustände, deren Energie kleiner ist als die Phononenergie.

In Halbleiterschichtstrukturen kommt es neben der inelastischen Elektron-Phonon-Streuung auch zur elastischen Streuung der Ladungsträger an den Potentialsprüngen, die an den Grenzschichten unterschiedlicher Materialien auftreten. Aufgrund der veränderten Randbedingungen handelt es sich bei den Elektronwellenfunktionen dann nicht mehr einfach um ebene Wellen bzw. Blochwellen, sondern es bilden sich stehende Wellen und eventuell lokalisierte Wellenfunktionen aus. In den Arbeiten [61, 62] untersuchten wir den Einfluß der elastischen Potentialstreuung auf die inelastische Elektron-Phonon-Streurate. Diesen Rechnungen liegt eine modifizierte Form von Gleichung (6.68) zugrunde, in der die Einteilchenenergien $e_{j\mathbf{k}}$ und das Matrixelement $g_{\mathbf{q}}$ durch ihre Werte in der Schichtstruktur ersetzt sind.

Das Ergebnis (6.66) für die Absenkung der Bandkante aufgrund des Polaroneffektes zeigt, daß die Elimination der Phononen durch die ϵ_0 -Approximation (s. Abschnitt 3.3)

streng genommen nicht gültig ist, da im Rahmen der ϵ_0 -Approximation der Anteil (6.63) der Spektralfunktion gar nicht vorkommt (vgl. Glg. (6.38) und Glg. (6.54)). Es handelt sich hier um eine ganz ähnliche Problematik, wie sie im Fall der Näherung statischer Abschirmung durch die Ladungsträger auftritt. In Abschnitt 5.6 wurde erläutert, daß man durch die einfache Ersetzung des nackten Coulombpotentials V_0/ϵ_0 durch eine statisch abgeschirmte Wechselwirkung V_0 den wichtigen Coulombloch-Beitrag zur Einteilchenselbstenergie nicht erhält. Ganz analog verhält es sich mit der Polaron-Verschiebung (6.66), die man durch die einfache Ersetzung $V_0/\epsilon_\infty \rightarrow V_0/\epsilon_0$ nicht erhält. Die Ursache für das Scheitern der ϵ_0 -Approximation ist, daß die Bedingung für ihre Anwendbarkeit, daß nämlich alle relevanten Einteilchenenergien e_{jk} viel kleiner sind als die Phononfrequenz ω_L , in Gleichung (6.66) nicht erfüllt ist, denn zur Konvergenz des Integrals sind Energien $e_{jk} \gg \omega_L$ wichtig. Ein Ausweg bestünde darin, das Konzept der quasistatischen Approximation (s. Abschnitt 5.5) auf die Elektron-Phonon-Wechselwirkung auszudehnen. Dies ist aber nicht möglich, da der Ausdruck

$$\frac{1}{2} \left(\frac{V_0(r)}{\epsilon_0} - \frac{V_0(r)}{\epsilon_\infty} \right)_{r \rightarrow 0}, \quad (6.69)$$

der der Coulombloch-Selbstenergie (5.68) für den Fall der Phononen entspricht, divergiert. Der Ausdruck (6.69) entsteht auch gerade, wenn man in Gleichung (6.66) die Rückstoßenergie e_{jq} wegstreicht:

$$- \sum_{\mathbf{q}} \frac{|g_{\mathbf{q}}|^2}{\omega_L + e_{jq}} \rightarrow - \sum_{\mathbf{q}} \frac{|g_{\mathbf{q}}|^2}{\omega_L} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{q}} \left(\frac{V_{0q}}{\epsilon_0} - \frac{V_{0q}}{\epsilon_\infty} \right). \quad (6.70)$$

Trotz der auftretenden Divergenz unterstreicht die Analogie zwischen den Ausdrücken (5.68) und (6.70) die physikalische Verwandtschaft zwischen dem Polaroneneffekt und der Ausbildung des Coulombloches.

Durch diese Betrachtung gelangt man zu der Aussage, die in Abschnitt 3.3 bereits vorweggenommen wurde: im Rahmen der ϵ_0 -Approximation hat man für die Bandlücke und für die effektiven Massen der Ladungsträger die durch den Polaroneneffekt renormierten Größen einzusetzen.

6.7 Die Einteilchenselbstenergie in der ϵ_0 -Approximation und in der quasistatischen Approximation

Im Rahmen der ϵ_0 -Approximation gilt Gleichung (6.60) für die Korrelationsselbstenergie

analog, wobei nun allerdings, wie soeben ausgeführt, die Polaronparameter für die Bandlücke und für die effektiven Massen der Ladungsträger zu verwenden sind. Die Spektralfunktion A_s des abgeschirmten Coulombpotentials ist in der ϵ_0 -Approximation durch Gleichung (6.18) mit (6.5) bzw. durch Gleichung (6.38) gegeben.

In Verallgemeinerung der Definitionen (5.64) und (5.67) lassen sich die renormierten Einteilchenenergien (6.61) auch schreiben als

$$e_{j\mathbf{k}} = \epsilon_{j\mathbf{k}} + \text{Re } \Sigma_{jj\mathbf{k}}^{\text{ex},r}(e_{j\mathbf{k}}) + \text{Re } \Sigma_{jj\mathbf{k}}^{\text{ch},r}(e_{j\mathbf{k}}). \quad (6.71)$$

Hierin sind Σ^{ex} und Σ^{ch} die Selbstenergie des abgeschirmten Austausches und die Coulombloch-Selbstenergie unter Berücksichtigung dynamischer Abschirmung:

$$\Sigma_{jj\mathbf{k}}^{\text{ex},r}(e_{j\mathbf{k}}) = - \sum_{\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^r(e_{j\mathbf{k}}-e_{j\mathbf{k}'}) f_{j\mathbf{k}'}, \quad (6.72)$$

$$\Sigma_{jj\mathbf{k}}^{\text{ch},r}(e_{j\mathbf{k}}) = - \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{A_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}(\omega') g(-\omega')}{e_{j\mathbf{k}} - e_{j\mathbf{k}'} - \omega' + i\delta'}. \quad (6.73)$$

Zur quasistatischen Approximation, Glg. (5.64) und Glg. (5.67), gelangt man nun zurück, indem man in Gleichung (6.71) die Rückstoßenergie $e_{j\mathbf{k}}-e_{j\mathbf{k}'}$ vernachlässigt (vgl. Glg. (6.70)), was gerechtfertigt sein sollte, falls diese Energie typischerweise klein ist gegen die Plasmafrequenz ω_p . Das entspricht aber genau der in Abschnitt 5.5 diskutierten Annahme, daß die relevanten Frequenzen der Störungen, die durch die Bewegung einzelner Ladungsträger entstehen, klein sind auf der Frequenzskala der kollektiven Bewegungen des Plasmas. Die Herleitung der quasistatischen Approximation in Abschnitt 5.5 besitzt den Vorteil, daß sie allein auf dieser Vorstellung basiert und nicht auf Gleichgewichtssysteme beschränkt ist.

Bei Vernachlässigung der Rückstoßenergie $e_{j\mathbf{k}}-e_{j\mathbf{k}'}$ wird die Selbstenergie (6.72) des abgeschirmten Austausches reell. Die Coulombloch-Selbstenergie (6.73) dagegen besitzt auch in dieser Näherung, in Übereinstimmung mit Gleichung (5.69), einen Imaginärteil

$$\Gamma_{jj\mathbf{k}} = - \text{Im } \Sigma_{jj\mathbf{k}}^{\text{ch},r} = \frac{1}{2} iV_s^{+-}(r=0, \omega=0). \quad (6.74)$$

Dies ist die Stoßrate der Ladungsträger in einer Näherung elastischer Streuung. In der Plasmonpol-Näherung, Glg. (6.38), verschwindet der Ausdruck (6.74), da keine elastische Streuung von Elektronen unter Emission oder Absorption von Plasmonen möglich ist. Natürlich kann aber elastische Einteilchenstreuung stattfinden. Unter Verwendung der

Lindhard-Formel (6.8) und der Gleichungen (6.9) und (6.4) ergibt sich in der quasistatischen Näherung

$$\Gamma_{jj\mathbf{k}} = \pi \sum_{j'\mathbf{k}'\mathbf{q}} |V_{\mathbf{sq}}^r(\omega=0)|^2 f_{j',\mathbf{k}'+\mathbf{q}} (1 - f_{j'\mathbf{k}'}) \delta(e_{j'\mathbf{k}'} - e_{j',\mathbf{k}'+\mathbf{q}}). \quad (6.75)$$

Im Rahmen der quasistatischen Approximation wird die abschirmende Wirkung eines Elektron-Loch-Plasmas überschätzt. Dagegen ist anzunehmen, daß die Stoßraten der Ladungsträger in dieser Näherung unterschätzt werden, denn die Streuung an Plasmonen ist durch den Ausdruck (6.75) gar nicht berücksichtigt.

7. OPTISCHE SPEKTREN VON ELEKTRON-LOCH-PLASMEN

In diesem Kapitel wird die Berechnung optischer Spektren von Elektron-Loch-Plasmen in Halbleitern diskutiert. Die Abschnitte 7.5 und 7.6 fassen bekannte Resultate zusammen, die im Rahmen der quasistatischen Approximation gewonnen wurden. In Kapitel 8 werde ich eine Darstellung meiner eigenen Berechnungen zum Einfluß dynamischer Korrelationseffekte auf das Spektrum der optischen Verstärkung durch ein Elektron-Loch-Plasma geben.

7.1 Die optische Polarisation, die durch den Pumpstrahl hervorgerufen wird

In Abschnitt 5.6 wurde die Gleichung der optischen Polarisation im Rahmen der quasistatischen Näherung, Glg. (5.75), hergeleitet. Diese Gleichung läßt sich unter der Annahme, daß sich die Ladungsträger teilweise oder vollständig in der Plasmaphase befinden, noch weiter vereinfachen. Zunächst soll der Fall diskutiert werden, daß sich das System nur unter dem Einfluß des anregenden Laserstrahls befindet ($E_0=E_p$, $\omega_0=\omega_p$). Der Laserstrahl sei als nahezu monochromatisch mit einer langsam veränderlichen Amplitude angenommen:

$$E_p(t) = E'_p(t) e^{-i\omega_p t}, \quad (7.1)$$

$$|\dot{E}'_p(t)| \ll |\omega_p E'_p|. \quad (7.2)$$

Aufgrund der großen Streuraten der Ladungsträger im Elektron-Loch-Plasma kommt es zu einer starken Dämpfung der optischen Polarisation. Man kann deshalb davon ausgehen, daß Fourierkomponenten der optischen Polarisation p_k zu Frequenzen, die verschieden sind von der Laserfrequenz ω_p , rasch ausgedämpft werden. Im wesentlichen wird die Polarisation deshalb der Amplitude des Laserfeldes folgen. Zu der Näherung, die dieses Verhalten zum Ausdruck bringt, gelangt man folgendermaßen: setzt man die optische Polarisation analog zum Laserfeld an als

$$p_k(t) = p'_k(t) e^{-i\omega_p t}, \quad (7.3)$$

so folgt aus Gleichung (5.75)

$$i\dot{p}_{\mathbf{k}} = (e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}} - \omega_p - i\gamma_{\mathbf{k}}) p_{\mathbf{k}} - (n_{v\mathbf{k}} - n_{c\mathbf{k}}) \left[\mu_{\mathbf{k}} E_p' + \sum_{\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'} \right]. \quad (7.4)$$

Hierbei wurde die Dämpfungskonstante γ in der skalaren Form eingesetzt, die gewöhnlich anstelle der Matrixform (5.76) verwendet wird. Die besprochene Näherung besteht nun darin, die Zeitableitung $\dot{p}_{\mathbf{k}}$ gegenüber dem Relaxationsterm $-\gamma_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}$ zu vernachlässigen,

$$|\dot{p}_{\mathbf{k}}| \ll |\gamma_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}|. \quad (7.5)$$

In dieser Approximation folgt die Polarisation dem Laserfeld E_p' und den Besetzungszahlen $n_{\rho\mathbf{k}}$ instantan, so daß die Amplitude $p_{\mathbf{k}}'(t)$ allein durch die Werte dieser Variablen zur Zeit t bestimmt ist. Es ist dann möglich, die Polarisation als dynamische Variable zu eliminieren. Dabei spricht man von der adiabatischen Elimination der optischen Polarisation. Für die Gültigkeit der Relation (7.5) ist vorauszusetzen, daß die spektrale Breite $\Delta\omega$ des Laserpulses viel kleiner ist als die Stoßverbreiterung $\gamma_{\mathbf{k}}$,

$$\Delta\omega \ll \gamma_{\mathbf{k}}. \quad (7.6)$$

Dies ist, da die mittleren Stoßzeiten in einem Elektron-Loch-Plasma im Pikosekundenbereich liegen, für Nanosekunden-Laserpulse sicher der Fall. Bei der Berechnung von optischen Spektren dagegen, die mit Femtosekunden-Laserpulsen gewonnen werden, ist die Zeitableitung in Gleichung (7.4) nicht vernachlässigbar. Es zeigt sich jedoch (s. Abschnitt 9.3), daß auch im Falle der Femtosekunden-Spektroskopie eine adiabatische Approximation möglich sein kann, sofern die Anregung stark nichtresonant erfolgt.

Mit Hilfe der adiabatischen Approximation (7.5) erhält man aus den Gleichungen (7.3) und (7.4)

$$p_{\mathbf{k}} = \frac{n_{v\mathbf{k}} - n_{c\mathbf{k}}}{e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}} - \omega_p - i\gamma_{\mathbf{k}}} \left[\mu_{\mathbf{k}} E_p + \sum_{\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'} \right]. \quad (7.7)$$

Um aus dieser Gleichung die optische Polarisation $p_{\mathbf{k}}$ bestimmen zu können, ist es noch erforderlich, die Besetzungszahlen $n_{\rho\mathbf{k}}$ zu kennen. Zur Bestimmung der Besetzungszahlen ist es im allgemeinen notwendig, die Quanten-Boltzmanngleichung zu lösen [46], die sich aus Gleichung (5.54) für $\rho=\nu$ ableiten läßt. Die Lösung der Boltzmanngleichung ist in der Regel keine leichte Aufgabe. In vielen Fällen ist es aber zusätzlich zur adiabatischen Approximation gerechtfertigt, anzunehmen, daß sich das Elektron-Loch-Plasma trotz der Einwirkung des Laserstrahls näherungsweise in einem thermodynamischen

Gleichgewichtszustand befindet, denn dieselben Streuprozesse, die die Dämpfung der optischen Polarisation bewirken, sind auch für die Relaxation der Ladungsträgerverteilungen verantwortlich. Die Besetzungszahlen $n_{\rho\mathbf{k}}$ sind dann im Rahmen der Quasiteilchennäherung (5.43) durch Fermiverteilungen gegeben:

$$n_{\rho\mathbf{k}} \simeq f_{\rho\mathbf{k}}. \quad (7.8)$$

Für das statisch abgeschirmte Coulombpotential $V_s(\omega=0)$ können in diesem Fall die Ergebnisse des Kapitels 6 verwendet werden.

Mit Gleichung (7.8) ist angenommen, daß sich der überwiegende Teil der vorhandenen Ladungsträger in Streuzuständen befinden. Liegt auch eine nennenswerte Anzahl gebundener Elektron-Loch-Paare vor, so kann zwar deren Beitrag zur Abschirmung vernachlässigt werden, ihr Beitrag zur Auffüllung des Phasenraumes muß jedoch berücksichtigt werden. Die Dichte freier und gebundener Ladungsträger kann bei gegebener Gesamtdichte aus einem Massenwirkungsgesetz bestimmt werden [10, §5.1].

Mit der adiabatischen Approximation (7.5) und der Gleichgewichtsannahme (7.8) ist das Problem der Bestimmung der optischen Polarisation $p_{\mathbf{k}}$ zu einem quasistationären und quasilinearen Problem geworden. Die resultierenden optischen Spektren hängen nur parametrisch über die Dichte der Ladungsträger von der Laserintensität und von der Zeit ab. Die Bestimmung der Ladungsträgerdichte als Funktion der Laserintensität und der Laserfrequenz kann mit Hilfe einer Bilanzgleichung erfolgen, in die die Absorptionsrate und die Rekombinationsrate der Elektron-Loch-Paare eingeht [12, §3.1.3]. Hierdurch werden die chemischen Potentiale μ_{ρ} in den Fermiverteilungen $f_{\rho\mathbf{k}}$ intensitäts- und zeitabhängig. Da der anregende Strahl durch Absorption geschwächt wird, findet man, daß das zusammengesetzte chemische Potential $\mu = \mu_c - \mu_v$ immer kleiner ist, als die Pumpfrequenz:

$$\mu = \mu_c - \mu_v < \omega_p. \quad (7.9)$$

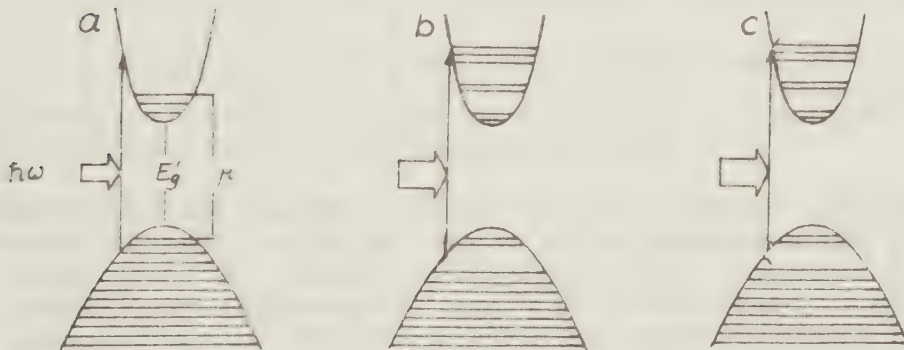
Figur 7.1a zeigt diese Situation schematisch.

Die Annahme, daß die Besetzungszahlen $n_{\rho\mathbf{k}}$ näherungsweise durch Fermiverteilungen gegeben sind, ist gerechtfertigt, solange die Intrabandrelaxationsrate $\gamma_{\mathbf{k}}$ groß ist gegen Rate der laserinduzierten Übergänge. Die genaue Bedingung hierfür lautet

$$|\mu_{\mathbf{k}} E_p| \ll \gamma_{\mathbf{k}}. \quad (7.10)$$

Ist die Relation (7.10) nicht erfüllt, so können sich Abweichungen der Ladungsträgerverteilungen von einer Gleichgewichtsverteilung bemerkbar machen, die von der optischen Erzeugung der Elektron-Loch-Paare bei der Wellenzahl $k_p = (2m(\omega_p - E_g))^{1/2}$ herrühren. In Figur 7.1b ist diese Situation schematisch wiedergegeben. Die optische Anregung ist hier so intensiv, daß sich bei der Relaxation der erzeugten Ladungsträger gewissermaßen ein Stau bildet. Dies hat zur Folge, daß Teilchen, die nicht rechtzeitig aus den Zuständen $|\mathbf{j}\mathbf{k}_p\rangle$ herausgestreut werden, sogleich wieder durch stimulierte Emission rekombinieren können. Der Absorptionskoeffizient des

Pumpstrahls wird durch stimulierte Emission vermindert, man sagt ausgebleicht. Man kann diesen Ausbleichvorgang auch in einem Bild von Quasiteilchen deuten, welche sich aus der kohärenten Überlagerung von Valenz- und Leitungsbandzuständen unter Laseranregung bilden. Im Energiespektrum dieser Quasiteilchen entsteht bei hoher Laserintensität, sobald die Bedingung (7.10) nicht mehr erfüllt ist, eine Lücke. Bei der Ausbildung dieser Lücke im Quasiteilchenspektrum spricht man vom resonanten optischen Stark-Effekt [23, 33]. Figur 7.1c zeigt, daß die Lücke gerade bei den Einteilchenenergien $e_{jp} = k_p^2 / 2m_i$ entsteht. In diesem Bild ist das Ausbleichen des Absorptionskoeffizienten also die Folge der verminderten Zustandsdichte der Quasiteilchen bei der Frequenz des Lasers. Experimentell konnte dieser Hochfeldeffekt bisher nicht deutlich nachgewiesen werden. Da die Stoßraten γ_k stark mit der Ladungsträgerdichte ansteigen (vgl. Glg. (6.62)), sind die Laserintensitäten, die man benötigt, um die Relation (7.10) zu verletzen, so groß, daß bei Verwendung von Nanosekunden-Laserpulsen der Kristall beschädigt werden würde. Mit der Entwicklung von Laserapparaturen, die Femtosekunden-Laserpulse erzeugen können, kam eine gewisse Hoffnung auf, kohärente optische Effekte auch an freien Ladungsträgern in Halbleitern beobachten zu können, denn zum einen tritt mit Femtosekunden-Laserpulsen nicht das Problem auf, daß der Kristall zerstört werden kann, da bedeutend weniger Energie im System deponiert wird, und zum anderen unterschreitet man mit Femtosekundenpulsen die Stoßzeiten γ_k^{-1} , gelangt also in das stoßfreie Regime, in dem die Einschränkung (7.10) nicht mehr gilt. Es hat sich jedoch gezeigt, daß die erhebliche spektrale Breite von Femtosekundenpulsen selbst eine nennenswerte Inkohärenz der optischen Polarisation bewirkt, die der Beobachtbarkeit des resonanten optischen Stark-Effektes im Halbleiter wiederum entgegenwirkt.



Figur 7.1. Optische Anregung eines Elektron-Loch-Plasmas (entnommen aus [10]). a) Quasigleichgewicht bei moderater Anregungsintensität, b) spektrales Ausbleichen bei hoher Anregungsintensität, c) Die Ausbildung einer spektralen Lücke bei hoher Anregungsintensität.

7.2 Die optische Polarisation, die durch den Teststrahl hervorgerufen wird

Um die lineare optische Suszeptibilität des angeregten Systems zu berechnen, soll nun ein zusätzliches schwaches Testfeld E_t eingeschaltet werden:

$$E_p(t) \rightarrow E_p(t) + E_t(t). \quad (7.11)$$

Dieses Feld hat Auslenkungen δp_k und $\delta n_{\rho k}$ der Größen p_k und $n_{\rho k}$ aus ihren quasistationären Werten zur Folge. Gleichung (7.4) soll in Bezug auf diese Auslenkungen linearisiert werden:

$$\begin{aligned} i\delta\dot{p}_k = & (e_{ck} - e_{vk} - i\gamma_k) \delta p_k - (f_{vk} - f_{ck}) \left(\mu_k E_t + \sum_{k'} V_{s,k-k'} \delta p_{k'} \right) \\ & - (f_{vk} - f_{ck}) \sum_{k'} \delta V_{s,k-k'} p_{k'} \\ & + \delta(e_{ck} - e_{vk} - i\gamma_k) p_k - \delta(n_{vk} - n_{ck}) \left(\mu_k E_p + \sum_{k'} V_{s,k-k'} p_{k'} \right). \end{aligned} \quad (7.12)$$

In Anwesenheit des Pumpstrahles E_p und der durch ihn hervorgerufenen optischen Polarisation p_k ist diese Gleichung schwer zu lösen. Es wird in diesem Fall, da es sich hier um die Erzeugung reeller Ladungsträger handelt, zur Berechnung der Besetzungszahlen $\delta n_{\rho k}$ unumgänglich, die Kinetik der Ladungsträger zu behandeln. Im Falle virtueller Elektron-Loch-Paare läßt sich dies vermeiden, und zur Behandlung des exzitonischen optischen Stark-Effektes werden Teststrahlspektren in Anwesenheit eines Pumpstrahles berechnet (s. Kapitel 9). Hier soll nur die einfachere Situation betrachtet werden, die vorliegt, wenn der Pumpstrahl und die von ihm hervorgerufene optische Polarisation p_k bereits abgeklungen sind, aber ein Elektron-Loch-Plasma zurückgeblieben ist, das sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Dann reduziert sich Gleichung (7.12) auf die erste Zeile

$$i\delta\dot{p}_{\mathbf{k}} = (e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}} - i\gamma_{\mathbf{k}}) \delta p_{\mathbf{k}} - (f_{v\mathbf{k}} - f_{c\mathbf{k}}) \left(\mu_{\mathbf{k}} E_t + \sum_{\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \delta p_{\mathbf{k}'} \right). \quad (7.13)$$

Nach Fouriertransformation $t \rightarrow \omega$ folgt aus Gleichung (7.13)

$$\delta p_{\mathbf{k}}(\omega) = \frac{f_{v\mathbf{k}} - f_{c\mathbf{k}}}{e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}} - \omega - i\gamma_{\mathbf{k}}} \left(\mu_{\mathbf{k}} E_t(\omega) + \sum_{\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \delta p_{\mathbf{k}'}(\omega) \right). \quad (7.14)$$

Die Integralgleichung (7.14) ist von derselben Form wie die Gleichung (7.7) der optischen Polarisation, die vom Pumpfeld herrührt. In Gleichung (7.7) hängen allerdings die auftretenden Besetzungszahlen implizit von der Frequenz des Pumpstrahles ab, und es gilt die Beziehung (7.9). Die Besetzungszahlen in Gleichung (7.14) dagegen sind unabhängig von der Frequenz und der Intensität des Teststrahles, und es kann auch $\omega < \mu$ gewählt werden. Hierdurch eröffnet sich die Möglichkeit der optischen Verstärkung durch ein Elektron-Loch-Plasma (s. Abschnitt 7.6).

7.3 Die Bethe-Salpeter-Gleichung für die lineare optische Suszeptibilität

Aus Gleichung (7.14) und der Definition (3.50) ergibt sich für die retardierte lineare optische Suszeptibilität des Elektron-Loch-Plasmas (mit $V=1$)

$$\chi(\omega) = \sum_{\mathbf{k}s} \chi_{\mathbf{k}}(\omega), \quad (7.15)$$

wobei die Größe $\chi_{\mathbf{k}}(\omega)$ die Lösung der Integralgleichung

$$\chi_{\mathbf{k}}(\omega) = \chi_{0\mathbf{k}}(\omega) + \chi_{0\mathbf{k}}(\omega) \frac{1}{\mu_{\mathbf{k}}} \sum_{\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \frac{1}{\mu_{\mathbf{k}'}} \chi_{\mathbf{k}'}(\omega) \quad (7.16)$$

darstellt. Die Funktion $\chi_{0\mathbf{k}}(\omega)$ ist gegeben durch

$$\chi_{0\mathbf{k}}(\omega) = |\mu_{\mathbf{k}}|^2 \frac{1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}}{e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} - \omega - i\gamma_{\mathbf{k}}}. \quad (7.17)$$

Die Größe $\chi_0(\omega) = \sum \chi_{0\mathbf{k}}(\omega)$ läßt sich auch berechnen als die retardierte Photonselbstenergie



$$\chi = \text{Diagram (7.18)} \quad (7.18)$$

(vgl. Glg. (6.5) für die longitudinale Polarisierbarkeit). Das Diagramm (7.18) beschreibt die unkorrelierte Bewegung eines optisch erzeugten Elektron-Loch-Paares. Die Korrelation der Bewegung von Elektron und Loch wird durch die Coulombanziehung V_c in Gleichung (7.16) hergestellt. Die Diagrammdarstellung von Gleichung (7.16) lautet



$$\text{Diagram (7.19)} \quad (7.19)$$

Die korrelierte Bewegung der Ladungsträger ist hier schraffiert dargestellt. Gleichung (7.19) stellt die Dyson-Gleichung der Paar-Greensfunktion von Elektronen und Löchern dar [12, §4.3.1]. Dieser Zusammenhang zwischen der optischen Suszeptibilität und der Paar-Greensfunktion besteht allerdings nur im Grenzfall verschwindender Laserintensität. Hier wurde die Gleichung der Funktion χ mit Hilfe der nichtdiagonalen Einteilchen-Greensfunktion G_{cv} berechnet. Dieser Zugang ist allgemeiner und dennoch leichter zu verstehen. Man nennt Gleichung (7.16) für die transversale Suszeptibilität die Bethe-Salpeter-Gleichung in der (statisch) abgeschirmten Leiter-Näherung. Die 'Leiter', die hier gemeint ist, entsteht bei der Iteration der Diagrammgleichung (7.19). Zur Lösung der Bethe-Salpeter-Gleichung soll zunächst der Fall eines Plasmas niedriger Dichte, in dem Exzitonen existieren können, diskutiert werden.

7.4 Optische Spektren unterhalb der Mott-Dichte

In diesem Abschnitt wird eine Entwicklung der optischen Polarisation nach ungestörten Exzitonwellenfunktionen dazu verwendet, um analytisch die Konstanz der Exzitonenergie zu zeigen. Eine solche Entwicklung ist unterhalb der Mott-Dichte sinnvoll, solange Exzitonen stabil sind.

Gleichung (7.14) läßt sich umformen zu

$$\sum_{\mathbf{k}'} [H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'} + \Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - (\omega + i\gamma) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}] \delta p_{\mathbf{k}'}(\omega) = (1 - f_{e\mathbf{k}} - f_{h,-\mathbf{k}}) \mu_{\mathbf{k}} E_t(\omega), \quad (7.20)$$

wobei zur Vereinfachung $\gamma_{\mathbf{k}} \rightarrow \gamma$ gesetzt wurde. Gleichung (7.20) stellt eine modifizierte getriebene Wannier-Gleichung dar (vgl. Glg. (3.37)). Die Hamiltonfunktion $H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ eines ungestörten Elektron-Loch-Paares wurde in Gleichung (3.38) definiert. Die Größe $\Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ ist gegeben durch

$$\Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = \sum_{\mathbf{k}''} (V_{e,\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''}) (\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - \delta_{\mathbf{k}'\mathbf{k}''}) \quad (7.21)$$

$$- \sum_{\mathbf{k}''} V_{e,\mathbf{k}-\mathbf{k}''} [(f_{e\mathbf{k}''} + f_{h,-\mathbf{k}''}) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - (f_{e\mathbf{k}} + f_{h,-\mathbf{k}}) \delta_{\mathbf{k}'\mathbf{k}''}].$$

Entwickelt man in Gleichung (7.20) gemäß Gleichung (3.42) nach ungestörten Exzitonwellenfunktionen $|n\rangle$, so erhält man für die Amplituden δp_n das Gleichungssystem

$$\sum_{n'} [(\omega_{n'} - \omega - i\gamma) \delta_{nn'} + \Delta H_{nn'}] \delta p_{n'}(\omega) = \sum_{\mathbf{k}} \phi_{n\mathbf{k}}^* (1 - f_{e\mathbf{k}} - f_{h,-\mathbf{k}}) \mu_{\mathbf{k}} E_t(\omega). \quad (7.22)$$

Hierin ist $\Delta H_{nn'} = \sum_{\mathbf{k}} \phi_{n\mathbf{k}}^* \Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \phi_{n'\mathbf{k}'}$ gegeben durch

$$\Delta H_{nn'} = \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} (V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} - V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}) \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* (\phi_{\mathbf{n}'\mathbf{k}} - \phi_{\mathbf{n}'\mathbf{k}'}) \quad (7.23)$$

$$- \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* [(f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} + f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}) \phi_{\mathbf{n}'\mathbf{k}} - (f_{\mathbf{e}\mathbf{k}} + f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) \phi_{\mathbf{n}'\mathbf{k}'}].$$

Diese Größe stellt eine Exzitonselbstenergie, also eine Zweiteilchen-Selbstenergie, dar. In den Ausdruck (7.23) gehen sowohl die Änderungen der Einteilchenenergien (Selbstenergiekorrekturen) als auch die Änderungen der Elektron-Loch-Anziehung (Vertexkorrekturen) ein. Die erste Zeile in Gleichung (7.23) stammt von der Coulombloch-Absenkung der Einteilchenenergien und von der Verminderung der Elektron-Loch-Anziehung durch Abschirmung. Die Beiträge in der zweiten Zeile von Gleichung (7.23) werden durch das Pauliprinzip verursacht: hier gehen die Austauschabsenkung der Einteilchenenergien und die Verminderung der Elektron-Loch-Anziehung durch die Phasenraumfüllung ein. Die führenden Beiträge zur Renormierung des Exzitonspektrums werden für niedrige Plasmadichten von den Termen in der ersten Zeile in Gleichung (7.23) verursacht. Für geringe Plasmadichten, solange Exzitonen stabil sind, läßt sich die Größe (7.23) als Störoperator behandeln. In einer störungstheoretischen Behandlung von Gleichung (7.22) geben die Diagonalelemente ΔH_{nn} die Verschiebungen der Energien der Exzitonresonanzen an (s. Abschnitt 9.2.3). Insbesondere erhält man im Grenzfall $n \rightarrow \infty$ die Bandkantenverschiebung. Hiervon kann man sich folgendermaßen überzeugen:

Für $n \rightarrow \infty$ wird die Bindung von Elektron-Loch-Paaren immer schwächer und ihre Wellenfunktionen nehmen einen immer größeren Raum ein. Im Impulsraum kommt es deshalb zu einer Lokalisation bei $\mathbf{k}=0$ [63]:

$$|\phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}|^2 \rightarrow \delta_{\mathbf{k},0} \quad (7.24)$$

$$\text{für } n \rightarrow \infty.$$

Hiermit folgt für die Vertexkorrekturen in Gleichung (7.23) (die Terme $\propto \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* \phi_{\mathbf{n}'\mathbf{k}'}$) für $n=n' \rightarrow \infty$

$$- \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}'} \rightarrow - V_{\mathbf{s},\mathbf{q}=0} |\phi_{\mathbf{n}}(r=0)|^2 \rightarrow 0, \quad (7.25)$$

$$\sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}'} = \sum_{\mathbf{k}} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* \left(\frac{\mathbf{k}^2}{2m} + E_n \right) \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}} \rightarrow 0, \quad (7.26)$$

$$\sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* (f_{\mathbf{e}\mathbf{k}} + f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}'} \rightarrow V_{\mathbf{s},\mathbf{q}=0} (f_{\mathbf{e},\mathbf{k}=0} + f_{\mathbf{h},\mathbf{k}=0}) |\phi_{\mathbf{n}}(r=0)|^2 \rightarrow 0. \quad (7.27)$$

Andererseits erhält man

$$- \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* (f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} + f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}) \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}} \rightarrow - \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{s},-\mathbf{k}'} (f_{\mathbf{e},\mathbf{k}'} + f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}). \quad (7.28)$$

Damit folgt aus Gleichung (7.23) für die Verschiebung der Bandkante

$$\Delta H_{nn} \rightarrow E'_g - E_g = \sum_{\mathbf{q}} (V_{\mathbf{s},\mathbf{q}} - V_{\mathbf{q}}) - \sum_{\mathbf{k}} V_{\mathbf{s},-\mathbf{k}} (f_{\mathbf{e},\mathbf{k}} + f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) \quad (7.29)$$

für $n \rightarrow \infty$,

also genau das Ergebnis (5.74).

Während die Vertexkorrekturen (7.25-27) zur Energie der Bandkante nicht beitragen, liefern sie für die Energien gebundener Zustände eine weitgehende Kompensation der Selbstenergiekorrekturen. Dies sieht man besonders einfach für die erste Zeile in Gleichung (7.23). Die Vertexkorrektur in dieser Zeile läßt sich für $n=n'$ schreiben als

$$- \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}}^* (V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} - V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}) \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}'} = - \int dV |\phi_{\mathbf{n}}(r)|^2 (V_{\mathbf{s}}(r) - V(r)). \quad (7.30)$$

Befinden sich Elektron und Loch in einem gebundenen Zustand, so halten sie sich in relativer Nähe zueinander auf, das heißt die Wahrscheinlichkeitsdichte $|\phi_{\mathbf{n}}(r)|^2$ ist besonders groß für $r \approx 0$. In diesem Fall unterscheidet sich der Ausdruck (7.30) nicht sehr von dem Wert

$$- (V_s(r) - V(r))_{r \rightarrow 0} \int dV |\phi_n(r)|^2 = - (V_s(r) - V(r))_{r \rightarrow 0}. \quad (7.31)$$

Er kompensiert also weitgehend den Coulombloch-Beitrag in Gleichung (7.23). Bei Verwendung des Yukawa-Potentials (6.33) ist diese Kompensation für $n=1s$ sogar exakt. Die zweite Zeile in Gleichung (7.23) läßt sich für $n=n'$ schreiben als

$$\begin{aligned} & - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \phi_{n\mathbf{k}}^* [(f_{e\mathbf{k}'} + f_{h,-\mathbf{k}'}) \phi_{n\mathbf{k}} - (f_{e\mathbf{k}} + f_{h,-\mathbf{k}}) \phi_{n\mathbf{k}'}] \\ & = - \sum_{\mathbf{k}} (f_{e\mathbf{k}} + f_{h,-\mathbf{k}}) \int dV \int dV' e^{i\mathbf{k}'(\mathbf{r}-\mathbf{r}')} \phi_n^*(\mathbf{r}) \phi_n(\mathbf{r}') (V_s(\mathbf{r}-\mathbf{r}') - V_s(\mathbf{r}')). \end{aligned} \quad (7.32)$$

Auch in diesem Ausdruck tritt für gebundene Zustände ($r \approx 0$) eine gewisse Kompensation ein.

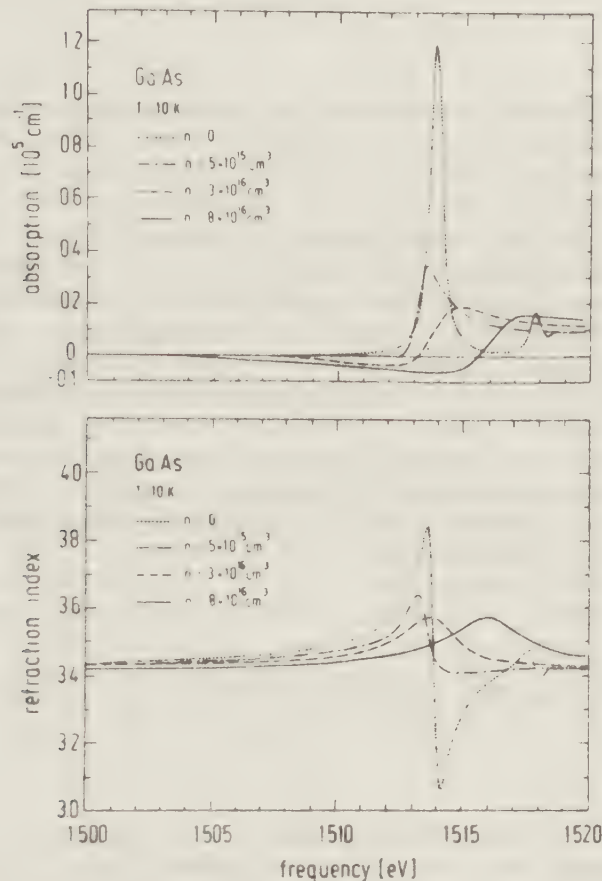
Während die Diagonalelemente ΔH_{nn} der Exzitonselbstenergie (7.23) die Verschiebung des Exzitonspektrums angeben, hängen die Nichtdiagonalelemente $\Delta H_{nn'}$ mit der Renormierung der Exzitonwellenfunktionen in Anwesenheit der freien Ladungsträger zusammen. Die Deformation der Exzitonen führt zusammen mit dem Faktor der Phasenraumfüllung auf der rechten Seite von Gleichung (7.22) zu einer Verringerung der optischen Oszillatorstärke des Exzitons. Dieser Trend setzt sich bis zum Verschwinden der Exzitonresonanz bei der Mott-Dichte fort. In Abschnitt 9.2 wird zur Behandlung des exzitonischen optischen Stark-Effektes eine ganz analoge Rechnung durchgeführt. Dort wird auch die störungstheoretische Formel für die Veränderung der optischen Oszillatorstärke des Exzitons hergeleitet und ausgewertet.

7.5 Das Verschwinden der Exzitonresonanz bei der Mott-Dichte

Die Bethe-Salpeter-Gleichung (7.16) kann nicht für beliebige Werte der Plasmadichte analytisch behandelt werden. Im Bereich der Mott-Dichte, bei der die Ionisation der Exzitonen einsetzt, muß die Integralgleichung (7.16) numerisch gelöst werden. Dies wurde in unserer Arbeitsgruppe für verschiedene Halbleitermaterialien durchgeführt [64, 65].

Figur 7.2 zeigt Absorptions- und Brechungsindexspektren, die für Galliumarsenid

berechnet wurden [65]. Die Plasmatemperatur beträgt hier $T=10\text{K}$, und für die Breite der Exzitonresonanz wurde $\gamma=0.05E_0$ angenommen.



Figur 7.2. Absorptions- und Brechungsindexspektren von Elektron-Loch-Plasmen in GaAs für verschiedene Ladungsträgerdichten (nach Löwenau et al. [65]).

Für verschwindende Plasmadichte ist die 1s- und die 2s-Resonanz zu erkennen. Mit zunehmender Plasmadichte verschiebt sich die Bandkante zu niedrigeren Energien, während die Energie der 1s-Resonanz nahezu konstant bleibt. Die Dichte $n=5 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ liegt bereits etwas über der Mott-Dichte, die zugehörigen optischen Spektren weisen jedoch noch eine starke exzitonische Überhöhung auf. Bei hohen Dichten schließlich entsteht ein Frequenzbereich der optischen Verstärkung im Spektrum des Teststrahles.

Analoge Berechnungen wurden in unserer Arbeitsgruppe auch für quasizweidimensionale Elektron-Loch-Systeme durchgeführt, wie sie in Halbleiterschichtstrukturen vorliegen, deren Schichtdicke den Bohr-Radius von Wannier-Exzitonen unterschreitet [66]. Durch die Einschränkung der Bewegungsfreiheit der Ladungsträger spielt in quasizweidimensionalen Elektron-Loch-Plasmen die Abschirmung der Coulombwechselwirkung eine weniger große Rolle als in ausgedehnten Halbleitern. Für den Mott-Übergang in zwei Dimensionen ist die Auffüllung des Fermionenzustandsraumes

die Hauptursache.

7.6 Optische Verstärkung bei hoher Plasmadichte

Für hohe Plasmadichten, bei denen keine gebundenen Elektron-Loch-Paare mehr existieren, kann die Bethe-Salpeter-Gleichung (7.16) wieder näherungsweise analytisch behandelt werden. Die Aufgabe ist dann, den Effekt der exzitonischen Verstärkung der optischen Spektren zu beschreiben, der durch die Mehrfachstreuung von Elektronen und Löchern entsteht. Obgleich die Elektronen und Löcher bei hohen Plasmadichten keine gebundenen Zustände mehr bilden können, ist doch die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron und ein Loch in relativer Nähe zueinander zu finden, höher als für große Teilchenabstände. Hierdurch wird auch der Wirkungsquerschnitt für die optische Erzeugung oder Vernichtung von Elektron-Loch-Paaren erhöht. In einem ersten Schritt soll die Gleichung betrachtet werden, die nach einmaliger Iteration von Gleichung (7.16) entsteht:

$$\chi_{\mathbf{k}}(\omega) \simeq \chi_{0\mathbf{k}}(\omega) + \chi_{0\mathbf{k}}(\omega) \frac{1}{\mu_{\mathbf{k}}} \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \frac{1}{\mu_{\mathbf{k}'}} \chi_{0\mathbf{k}'}(\omega). \quad (7.33)$$

Durch Gleichung (7.33) wird die Paarkorrelation in erster Ordnung berücksichtigt. Dies kann nur weit oberhalb der Mott-Dichte ausreichend sein. Um die exzitonische Verstärkung besser zu erfassen, benötigt man eine nichtstörungstheoretische Näherung der Bethe-Salpeter-Gleichung. Eine gebräuchliche Vorgehensweise in solchen Fällen ist es, eine sogenannte 'Resummation' durchzuführen: die Terme auf der rechten Seite von Gleichung (7.33) lassen sich als die ersten Glieder einer geometrischen Reihe auffassen, die man durch die Ersetzung

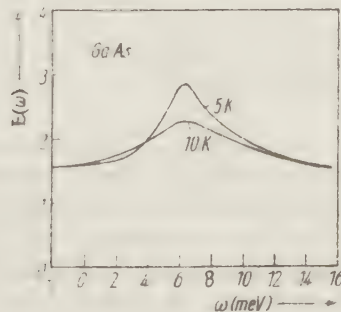
$$\chi_{\mathbf{k}}(\omega) \rightarrow \chi_{\mathbf{k}}(\omega) \simeq \frac{\chi_{0\mathbf{k}}(\omega)}{1 - \frac{1}{\mu_{\mathbf{k}}} \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \frac{1}{\mu_{\mathbf{k}'}} \chi_{0\mathbf{k}'}(\omega)} \quad (7.34)$$

vervollständigen kann. In einer bestimmten Weise erfaßt der Ausdruck (7.34) die Vielfachstreuung von Elektronen und Löchern. Der Nenner in Gleichung (7.34) liefert die exzitonische Verstärkung. Schreibt man Gleichung (7.34) um zu

$$\chi_{\mathbf{k}}(\omega) = \chi_{0\mathbf{k}}(\omega) + \chi_{\mathbf{k}}(\omega) \frac{1}{\mu_{\mathbf{k}}} \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \frac{1}{\mu_{\mathbf{k}'}} \chi_{0\mathbf{k}'}(\omega), \quad (7.35)$$

so sieht man, daß durch den Übergang von Gleichung (7.16) zu Gleichung (7.35) im zweiten Term auf der rechten Seite die Größen χ und χ_0 vertauscht wurden, was die Lösung natürlich bedeutend erleichtert. Man kann die Näherung (7.34) auch systematisch im Rahmen einer Pade-Approximation [67] oder im Rahmen einer T-Matrix-Approximation der Bethe-Salpeter-Gleichung [68] ableiten. Vergleiche mit den Ergebnissen der numerischen Lösung der Bethe-Salpeter-Gleichung haben gezeigt, daß die Formel (7.34) oberhalb der Mott-Dichte eine gute Näherungslösung darstellt [67].

Figur 7.3 zeigt für ein Elektron-Loch-Plasma in Galliumarsenid den Faktor $E(\omega) = \alpha(\omega)/\alpha_0(\omega)$ der exzitonen Verstärkung des Absorptionsspektrums, wie er in der Arbeit [68] angegeben wurde. Die Photonfrequenz ω ist in dieser Figur relativ zur renormierten Bandkante aufgetragen ($\omega = \omega - E_g'$), und die Plasmadichte beträgt $n = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Man erhält für die exzitonen Verstärkung Kurven, die ein Maximum in der Nähe des zusammengesetzten chemischen Potentials $\mu = \mu_e + \mu_h$, also gerade im Übergangsbereich zwischen optischer Verstärkung und Absorption, aufweisen. Bei tiefen Kristalltemperaturen bildet sich aus diesem Maximum eine scharfe Resonanz aus, die den Kollaps des Elektron-Loch-Plasmas in die Phase eines exzitonen Isolators signalisiert. Mit zunehmender Plasmatemperatur verflachen diese Kurven jedoch rasch. Dasselbe ist mit zunehmender Plasmadichte infolge der stärker werdenden Abschirmung der Coulombanziehung zwischen Elektronen und Löchern der Fall.



Figur 7.3. Der Faktor der exzitonen Verstärkung des Absorptionsspektrums eines Elektron-Loch-Plasmas in GaAs für $n = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (nach Haug und Thoai [68]).

8. DER EINFLUSS DYNAMISCHER KORRELATIONSEFFEKTE AUF DIE OPTISCHEN SPEKTREN EINES ELEKTRON-LOCH-PLASMAS

Die in den Abschnitten 7.5 und 7.6 geschilderten Resultate für die optischen Spektren von Elektron-Loch-Plasmen wurden im Rahmen der quasistatischen Approximation gewonnen. In dieser Näherung wird die Abschirmung der Ladungsträger durch optische Phononen und die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger als instantan behandelt, und es wird keine inelastische Streuung der Teilchen berücksichtigt. In diesem Kapitel gebe ich eine Schilderung meiner Untersuchungen zum Einfluß dynamischer Effekte im System der Ladungsträger und der Phononen auf das Spektrum der optischen Verstärkung eines Elektron-Loch-Plasmas.

8.1 Die Gleichung der optischen Polarisation unter Berücksichtigung dynamischer Korrelationseffekte

Um den Einfluß von Retardierungseffekten, die im System der Ladungsträger und der optischen Phononen auftreten, zu untersuchen, muß auf die Gleichung (5.54) der Greenschen Funktionen zurückgegriffen werden. Es sei wieder angenommen, daß sich das System unter dem Einfluß eines monochromatischen Laserstrahls befindet:

$$E_0(t) = E'_0 e^{-i\omega_0 t}. \quad (8.1)$$

Bei der Berechnung der Reaktion des Systems auf den Teststrahl ($E_0=E_t$, $\omega_0=\omega_t$) wurde in Abschnitt 7.2 nicht von einer monochromatischen Anregung ausgegangen, sondern man konnte durch Fouriertransformation $t \rightarrow \omega$ der Gleichung (7.13) zu der linearen optischen Suszeptibilität (7.15) gelangen. Im Rahmen einer linearen und stationären Theorie genügt es aber auch, gemäß Gleichung (8.1) lediglich die Reaktion des Systems auf jeweils eine einzige Fourierkomponente des Feldes zu berechnen. Dieses Vorgehen ist im vorliegenden Fall rechnerisch etwas einfacher. Im folgenden soll deshalb eine stationäre Lösung von Gleichung (5.54) für die optische Polarisation ($(\rho\nu)=(c\nu)$) im monochromatischen Feld (8.1) gesucht werden. Durch die Laseroszillation ist die Homogenität der Greenschen Funktionen bezüglich ihrer Zeitvariablen gestört, dies jedoch in einer Weise, die sich leicht beheben läßt. Das kann durch die Definition der modifizierten Fermioperatoren

$$a'_{ck}(t) = a_{ck}(t) e^{i\omega_0 t/2}, \quad (8.2)$$

$$a'_{\mathbf{v}\mathbf{k}}(t) = a_{\mathbf{v}\mathbf{k}}(t) e^{-i\omega_0 t/2}$$

geschehen. Mit diesen Operatoren sind modifizierte Greensche Funktionen G' gemäß Definition (5.3) zu bilden. Es gilt dann

$$G'^{\xi\xi'}_{\mathbf{c}\mathbf{v}\mathbf{k}}(T, \tau) = G^{\xi\xi'}_{\mathbf{c}\mathbf{v}\mathbf{k}}(T, \tau) e^{i\omega_0 T}, \quad (8.3)$$

$$G'^{\xi\xi'}_{\mathbf{c}\mathbf{c}\mathbf{k}}(T, \tau) = G^{\xi\xi'}_{\mathbf{c}\mathbf{c}\mathbf{k}}(T, \tau) e^{i\omega_0 \tau/2},$$

$$G'^{\xi\xi'}_{\mathbf{v}\mathbf{v}\mathbf{k}}(T, \tau) = G^{\xi\xi'}_{\mathbf{v}\mathbf{v}\mathbf{k}}(T, \tau) e^{-i\omega_0 \tau/2}.$$

Analog seien modifizierte Selbstenergien definiert durch

$$\Sigma'^{\xi\xi'}_{\mathbf{c}\mathbf{v}\mathbf{k}}(T, \tau) = \Sigma^{\xi\xi'}_{\mathbf{c}\mathbf{v}\mathbf{k}}(T, \tau) e^{i\omega_0 T}, \quad (8.4)$$

$$\Sigma'^{\xi\xi'}_{\mathbf{c}\mathbf{c}\mathbf{k}}(T, \tau) = \Sigma^{\xi\xi'}_{\mathbf{c}\mathbf{c}\mathbf{k}}(T, \tau) e^{i\omega_0 \tau/2},$$

$$\Sigma'^{\xi\xi'}_{\mathbf{v}\mathbf{v}\mathbf{k}}(T, \tau) = \Sigma^{\xi\xi'}_{\mathbf{v}\mathbf{v}\mathbf{k}}(T, \tau) e^{-i\omega_0 \tau/2}.$$

Ausgedrückt durch die Funktionen (8.3) und (8.4) wird Gleichung (5.54) für $(\rho\nu)=(\mathbf{c}\mathbf{v})$ zu

$$i \frac{\partial}{\partial T} G'^{+-}_{\mathbf{c}\mathbf{v}\mathbf{k}}(tt') = (\epsilon_{\mathbf{c}\mathbf{k}} - \epsilon_{\mathbf{v}\mathbf{k}} - \omega_0) G'^{+-}_{\mathbf{c}\mathbf{v}\mathbf{k}}(tt') \quad (8.5)$$

$$+ \sum_{\mu} \int dt_1 [\Sigma'^{\mathbf{r}}_{\mathbf{c}\mu\mathbf{k}}(tt_1) G'^{+-}_{\mu\mathbf{v}\mathbf{k}}(t_1 t') - \Sigma'^{+-}_{\mathbf{c}\mu\mathbf{k}}(tt_1) G'^{\mathbf{B}}_{\mu\mathbf{v}\mathbf{k}}(t_1 t')]$$

$$+ \sum_{\mu} \int dt_1 [G'^{\mathbf{r}}_{\mathbf{c}\mu\mathbf{k}}(tt_1) \Sigma'^{+-}_{\mu\mathbf{v}\mathbf{k}}(t_1 t') - G'^{+-}_{\mathbf{c}\mu\mathbf{k}}(tt_1) \Sigma'^{\mathbf{B}}_{\mu\mathbf{v}\mathbf{k}}(t_1 t')].$$

Man stellt fest, daß in Gleichung (8.5) die explizite Zeitabhängigkeit des Laserfeldes (8.1) nicht mehr auftritt. Für die Funktionen G' und Σ' ist es folglich möglich, Homogenität bezüglich der Zeitvariablen anzunehmen:

$$G'_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(T,\tau) = G'_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(\tau), \quad (8.6)$$

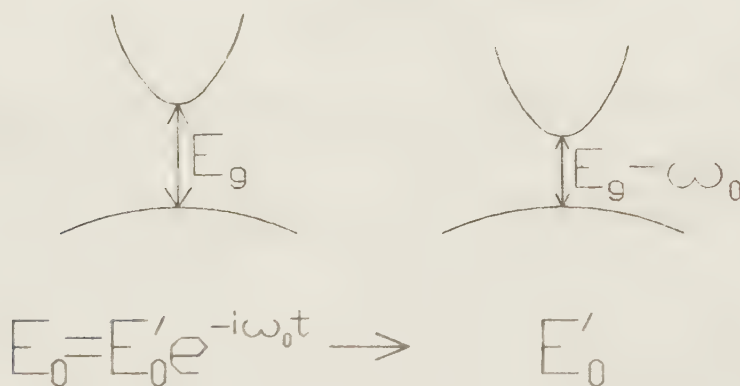
$$\Sigma'_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(T,\tau) = \Sigma'_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(\tau).$$

Dieser Übergang in ein formal zeitunabhängiges System läßt sich auch durch eine unitäre Transformation des Hamiltonoperators erreichen [40]. Man beachte die spektralen Verschiebungen, die sich durch die Transformation (8.3) für die Funktionen $G_{\rho\rho}$ ergeben:

$$G'_{cck}^{\xi\xi'}(\omega) = G_{cck}^{\xi\xi'}(\omega + \omega_0/2), \quad (8.7)$$

$$G'_{vvk}^{\xi\xi'}(\omega) = G_{vvk}^{\xi\xi'}(\omega - \omega_0/2).$$

Die Beziehungen (8.7) zeigen, daß durch die Transformation $G \rightarrow G'$ Valenzband und Leitungsband um die Laserfrequenz ω_0 aufeinander zugeschoben werden. Figur 8.1 soll diesen Sachverhalt verdeutlichen.



Figur 8.1. Die Transformation (8.2) auf ein zeitunabhängiges Gleichungssystem.

Man definiert aus diesem Grund die verschobenen Energiebänder

$$\epsilon'_{c\mathbf{k}} = \epsilon_{c\mathbf{k}} - \omega_0/2, \quad (8.8)$$

$$\epsilon'_{v\mathbf{k}} = \epsilon_{v\mathbf{k}} + \omega_0/2.$$

Durch Fouriertransformation $\tau \rightarrow \omega$ von Gleichung (8.5) erhält man mit der Annahme (8.6) die Gleichung

$$0 = [\epsilon'_{c\mathbf{k}} + \Sigma'_{cc\mathbf{k}}(\omega) - \epsilon'_{v\mathbf{k}} - \Sigma'_{vv\mathbf{k}}(\omega)] G'^{+-}_{cv\mathbf{k}}(\omega) \quad (8.9)$$

$$+ \Sigma'^{+-}_{cv\mathbf{k}}(\omega) [G'^r_{cc\mathbf{k}}(\omega) - G'^a_{vv\mathbf{k}}(\omega)]$$

$$+ G'^r_{cv\mathbf{k}}(\omega) \Sigma'^{+-}_{vv\mathbf{k}}(\omega) - \Sigma'^{+-}_{cc\mathbf{k}}(\omega) G'^a_{cv\mathbf{k}}(\omega)$$

$$+ \Sigma'^r_{cv\mathbf{k}}(\omega) G'^{+-}_{vv\mathbf{k}}(\omega) - G'^{+-}_{cc\mathbf{k}}(\omega) \Sigma'^a_{cv\mathbf{k}}(\omega).$$

Gleichung (8.9) stellt ein bedeutend komplizierteres Problem dar als die Integralgleichung (7.16). Selbst linear bezüglich des Laserfeldes und unter der Annahme, daß sich die Ladungsträger im thermodynamischen Gleichgewicht befinden, wurde diese Gleichung bisher nicht gelöst. In Kapitel 10 wird Gleichung (8.9) für den Fall eines Systems virtueller Elektron-Loch-Paare störungstheoretisch weiterbehandelt. Hier soll für den Fall eines Elektron-Loch-Plasmas, das sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, aufgezeigt werden, worin die Schwierigkeiten einer nichtstörungstheoretischen Lösung von Gleichung (8.9) bestehen:

Im Falle eines Gleichgewichtssystems ergibt sich zunächst die Vereinfachung, daß für alle in Gleichung (8.9) auftretenden Funktionen mit gleichen Bandindizes die bekannten Gleichgewichtswerte eingesetzt werden können. Die erste Zeile in Gleichung (8.9) ist folglich unproblematisch, denn hier tritt mit ungleichen Bandindizes nur die zu bestimmende Funktion $G'^{+-}_{cv\mathbf{k}}(\omega)$ auf. In der zweiten Zeile tritt linear im Feld die Funktion $\Sigma'^{+-}_{cv\mathbf{k}}(\omega)$ auf. Im Rahmen der abgeschirmten Hartree-Fock-Näherung läßt sich diese Größe durch die gesuchte Funktion G'^{+-}_{cv} ausdrücken:

$$\Sigma'^{+-}_{cv\mathbf{k}}(\omega) = -i \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi} V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+-}(\omega-\omega') G'^{+-}_{cv\mathbf{k}'}(\omega'). \quad (8.10)$$

Gleichung (8.10) zeigt eine der auftretenden Schwierigkeiten: man hat nun eine Integralgleichung bezüglich beider Variablen $\mathbf{k}$ und ω zu lösen. In der dritten Zeile in Gleichung (8.9) tritt linear im Feld als weitere Unbekannte die Funktion G_{cv}^r auf. Durch Auflösen der Dyson-Gleichung (5.51) nach den retardierten Greensfunktionen findet man [40]

$$G_{cv\mathbf{k}}^r(\omega) = G_{c\mathbf{k}}^r(\omega) \Sigma_{cv\mathbf{k}}^r(\omega) G_{v\mathbf{k}}^r(\omega) \quad (8.11)$$

mit der Hilfsfunktion

$$G_{\rho\mathbf{k}}^r(\omega) = \frac{1}{\omega - \epsilon'_{\rho\mathbf{k}} - \Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega)} \quad (8.12)$$

und der retardierten Greensfunktion

$$G_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) = \frac{1}{\omega - \epsilon'_{\rho\mathbf{k}} - \Sigma_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) - S_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega)}. \quad (8.13)$$

Die zusammengesetzte Selbstenergie

$$S_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega) = \Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^r(\omega) G_{\nu\mathbf{k}}^r(\omega) \Sigma_{\nu\rho\mathbf{k}}^r(\omega) \quad (8.14)$$

($\nu \neq \rho$) koppelt Valenzband und Leitungsband. Diese Kopplung führt zu der in Figur 7.1c auf S. 119 schematisch dargestellten Renormierung der Bandstruktur [33]. Der Anteil des Laserfeldes zur Selbstenergie (8.14) läßt sich symbolisieren durch das Diagramm

$$\text{Diagramm (8.15):} \quad \mu^* E^* \text{ --- } G_{cc} \text{ --- } \mu E \quad \text{O Z W.} \quad \mu E \text{ --- } G_{vv} \text{ --- } \mu^* E^* \quad (8.15)$$

Dies ist das Analogon zur Elektron-Photon-Selbstenergie

$$\text{Diagramm (8.16):} \quad \mu^* D G \mu \quad (8.16)$$

Bei der klassischen Behandlung des Laserfeldes erhält man den Ausdruck (8.15) anstelle der Selbstenergie (8.16) [69]. Da die Selbstenergie S , Glg. (8.14), bereits quadratisch in der Feldamplitude ist, kann sie an dieser Stelle vernachlässigt werden, so daß gilt

$$G_{\rho\mathbf{k}}^r(\omega) \simeq G_{\rho\rho\mathbf{k}}^r(\omega), \quad (8.17)$$

$$G_{c\mathbf{v}\mathbf{k}}^r(\omega) \simeq G_{cc\mathbf{k}}^r(\omega) \Sigma_{c\mathbf{v}\mathbf{k}}^r(\omega) G_{v\mathbf{v}\mathbf{k}}^r(\omega). \quad (8.18)$$

Im Rahmen der abgeschirmten Hartree-Fock-Approximation wird Gleichung (8.18) zu der Integralgleichung

$$G_{c\mathbf{v}\mathbf{k}}^r(\omega) = G_{cc\mathbf{k}}^r(\omega) G_{v\mathbf{v}\mathbf{k}}^r(\omega) \quad (8.19)$$

$$\times \left\{ \Sigma_{c\mathbf{v}\mathbf{k}}^{\text{HF}} + i \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi} [\Delta V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^r(\omega-\omega') G_{c\mathbf{v}\mathbf{k}'}^{r+}(\omega') + \Delta V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^+(\omega-\omega') G_{c\mathbf{v}\mathbf{k}'}^r(\omega')] \right\}$$

Gleichung (8.19) kann zusammen mit Gleichung (8.9) zur Bestimmung der Funktionen $G_{c\mathbf{v}}^{r+}$ und $G_{c\mathbf{v}}^r$ dienen. Anstelle einer Integralgleichung bezüglich der Variablen $\mathbf{k}$ in der quasistatischen Approximation hat man nun also zwei gekoppelte Integralgleichungen bezüglich beider Variablen $\mathbf{k}$ und ω zu lösen (vgl. [10, Glg. (4.29)]). Dieses Problem wurde bisher nicht angegangen. Stattdessen hat man zur Berücksichtigung von Retardierungseffekten im Elektron-Loch-Plasma ein bestimmtes Näherungsverfahren, die sogenannte Shindo-Approximation, verwendet. Dieses Verfahren kann aber für ein entartetes Plasma zu unphysikalischen Artefakten führen [70, §3]. Auf modernen Rechenanlagen sollte es heute inzwischen möglich sein, die gekoppelten Integralgleichungen (8.9) und (8.19) zu lösen.

Die Gleichungen (8.9) und (8.19) zur Bestimmung der optischen Suszeptibilität berücksichtigen sowohl die Elektron-Loch-Korrelation, die für die exzitonische Verstärkung der optischen Spektren verantwortlich ist und die zur Bildung von Exzitonen führen kann, als auch die dynamischen Retardierungseffekte im Elektron-Loch-Plasma und im Kristallgitter. Beide Probleme in der Theorie simultan behandeln zu können wäre wünschenswert, ist aber sehr kompliziert. Die Problematik des Mott-Übergangs von Exzitonen und der exzitonischen Verstärkung im Elektron-Loch-Plasma kann im Rahmen der quasistatischen Approximation befriedigend beschrieben werden (s. Abschnitt 7.5). Weniger gut verstanden ist die Auswirkung der Dynamik der Ladungsträger und der Gitterschwingungen auf die optischen Spektren. Insbesondere stellt sich die Frage, ob in den optischen Spektren neue Strukturen, etwa aufgrund der inelastischen Streuung der Ladungsträger, auftreten können. Dies könnte besonders bei hohen Plasmadichten der Fall sein, wenn kollektive Moden die Dynamik der Ladungsträger dominieren. E. Göbel et al.

und H. Saito veröffentlichten 1981 Spektren der optischen Verstärkung durch Elektron-Loch-Plasmen in Galliumarsenid und in Cadmiumsulfid, die Plasmon- bzw. Plasmon-Phonon-Seitenbanden zu zeigen schienen [71, 72, 73]. Theoretische Berechnungen von R. Zimmermann stehen mit dieser Interpretation allerdings nicht in Einklang [10, S. 136]. Meine Berechnungen scheinen jedoch zu bestätigen, daß es sich bei den beobachteten Strukturen um Plasmon-Phonon-Satelliten handelt [74]. Die folgenden Abschnitte schildern meine Berechnungen und Ergebnisse zu diesem Problem.

8.2 Der Einfluß der Verbreiterung der Zustandsdichte der Ladungsträger auf das Absorptionsspektrum

In Abschnitt 7.6 wurden Berechnungen zur Theorie der exzitonischen Verstärkung der optischen Spektren eines Elektron-Loch-Plasmas erläutert. Es wurde besprochen, daß die exzitonische Verstärkung als Funktion der Frequenz mit zunehmender Plasmadichte abnimmt und verflacht. Für hohe Dichten ähneln die optischen Spektren eines Elektron-Loch-Plasmas den Spektren, die man mit dem Ausdruck (7.17) erhält, in dem die Elektron-Loch-Korrelation nicht berücksichtigt ist. Tatsächlich wird das Spektrum, das man ohne Berücksichtigung der Elektron-Loch-Korrelation erhält, häufig zur Anpassung an experimentelle Absorptionsspektren verwendet. Zimmermann hat gezeigt [10, Glg. (5.82) ff.], daß die theoretische Formel für die Absorptionskonstante eines Elektron-Loch-Plasmas in jedem Fall auf die Form des Spektrums ohne Elektron-Loch-Korrelation gebracht werden kann durch die Einführung eines exzitonisch verstärkten, frequenzabhängigen optischen Matricelementes anstelle des nackten optischen Matricelementes μ_k . Es erscheint also nicht unbegründet, zur Untersuchung des Einflusses dynamischer Prozesse auf die optischen Spektren das Spektrum, das sich ohne Berücksichtigung der Elektron-Loch-Korrelation ergibt, zum Ausgangspunkt zu nehmen. Die Elektron-Loch-Korrelation soll deshalb im folgenden außer acht gelassen werden. In dieser vereinfachten Theorie wird die Selbstenergie Σ'_{cv} zu

$$\Sigma'_{cvk} \rightarrow -\mu_k E_0 \delta_{\xi\xi'}. \quad (8.20)$$

Mit der Ersetzung (8.20) und der Beziehung (8.18), die für niedrige Laserfeldstärke gültig ist, läßt sich Gleichung (8.9) umstellen zu

$$[\epsilon'_{ck} + \Sigma'^r_{cck}(\omega) - \epsilon'_{vk} - \Sigma'^a_{vvk}(\omega)] G'^{+-}_{cvk}(\omega) \quad (8.21)$$

$$= \mu_k E_0 [G'^r_{cck}(\omega) G'^r_{vvk}(\omega) \Sigma'^{+-}_{vvk}(\omega) - \Sigma'^{+-}_{cck}(\omega) G'^a_{cck}(\omega) G'^a_{vvk}(\omega) + G'^{+-}_{vvk}(\omega) - G'^{+-}_{cck}(\omega)].$$

Diese Gleichung kann unter Verwendung der Gleichgewichtsbeziehungen (5.40) und (5.41) noch erheblich vereinfacht werden [75]. Man findet

$$\begin{aligned} & G_{cck}^r(\omega) G_{vvk}^r(\omega) \Sigma_{vvk}^{+-}(\omega) + G_{vvk}^{+-}(\omega) \\ &= - G_{cck}^r(\omega) G_{vvk}^{+-}(\omega) [\epsilon'_{ck} + \Sigma_{cck}^r(\omega) - \epsilon'_{vk} - \Sigma_{vvk}^a(\omega)] \end{aligned} \quad (8.22)$$

sowie

$$\begin{aligned} & G_{cck}^a(\omega) G_{vvk}^a(\omega) \Sigma_{cck}^{+-}(\omega) + G_{cck}^{+-}(\omega) \\ &= G_{vvk}^a(\omega) G_{cck}^{+-}(\omega) [\epsilon'_{ck} + \Sigma_{cck}^r(\omega) - \epsilon'_{vk} - \Sigma_{vvk}^a(\omega)]. \end{aligned} \quad (8.23)$$

Damit wird aus Gleichung (8.21)

$$G_{cvk}^{+-}(\omega) = - \mu_k E'_0 [G_{cck}^r(\omega) G_{vvk}^{+-}(\omega) + G_{vvk}^a(\omega) G_{cck}^{+-}(\omega)]. \quad (8.24)$$

Somit gelangt man für die lineare optische Suszeptibilität ohne Berücksichtigung der Elektron-Loch-Korrelation zu dem Ergebnis

$$\begin{aligned} \chi_0^x(\omega_0) &= \sum_{ks} \mu_k^* \int \frac{d\omega}{2\pi i} G_{cvk}^{+-}(\omega) / E'_0 \\ &= - \sum_{ks} |\mu_k|^2 \int \frac{d\omega}{2\pi i} [G_{cck}^r(\omega+\omega_0) G_{vvk}^{+-}(\omega) + G_{vvk}^a(\omega) G_{cck}^{+-}(\omega+\omega_0)]. \end{aligned} \quad (8.25)$$

Das Ergebnis (8.25) für die optische Suszeptibilität ist identisch mit der Formel, die man bei der Auswertung des Polarisationsdiagrammes (7.18) erhält. Die Identität der optischen Suszeptibilität mit der Photonselbstenergie gilt allerdings nur linear bezüglich der Laseramplitude. Bei endlicher Laserintensität, wenn ein Unterschied zwischen den Funktionen G_ρ , Glg. (8.12), und $G_{\rho\rho}$, Glg. (8.13), besteht, erhält man anstelle von Gleichung (8.25) die Formel [69, Glg. (3.127)]

$$\chi_0^r(\omega_0) = - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{s}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 \int \frac{d\omega}{2\pi i} [G_{\mathbf{c}\mathbf{k}}^r(\omega+\omega_0) G_{\mathbf{v}\mathbf{v}\mathbf{k}}^{+-}(\omega) + G_{\mathbf{v}\mathbf{v}\mathbf{k}}^{\mathbf{a}}(\omega) G_{\mathbf{c}\mathbf{k}}^{+-}(\omega+\omega_0)].$$

Setzt man die Quasiteilchennäherung (5.43) in Gleichung (8.25) ein, so erhält man das Ergebnis (7.17) (mit $\gamma_{\mathbf{k}}=0^+$) zurück. Im folgenden soll eine gegenüber Gleichung (7.17) verbesserte Formel für die optische Suszeptibilität χ_0 hergeleitet werden, indem anstelle der Quasiteilchennäherung (5.43) die frequenzabhängig verbreiterten Spektralfunktionen (5.29) verwendet werden.

Es genügt, lediglich den Imaginärteil der optischen Suszeptibilität zu berechnen. Den Realteil kann man bei Bedarf mit Hilfe einer Kramers-Kronig-Transformation aus dem Imaginärteil erhalten [1, §66]. Zur näherungsweisen Bestimmung der Frequenzabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$, Glg. (3.54), genügt aber oftmals bereits auch die Kenntnis des Imaginärteils der optischen Suszeptibilität, denn infolge des Beitrags der dielektrischen Konstanten ϵ_∞ zum Realteil der dielektrischen Funktion $\epsilon(\omega)$ ist die relative Änderung des Brechungsindex $n(\omega)$ im Bereich der Bandkante nicht sehr groß, und man kann anstelle von Gleichung (3.54) die Näherung

$$\alpha(\omega) \simeq \frac{E_{\mathbf{k}}' \operatorname{Im} \epsilon(\omega)}{n(E_{\mathbf{k}}')c} \quad (8.26)$$

verwenden. In der Näherung (8.26) erhält man dann aus Gleichung (8.25) mit Hilfe der Gleichgewichtsbeziehung (5.40) und im Elektron-Loch-Bild für den Absorptionskoeffizienten die Formel

$$\alpha_0(\omega) = C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 \int \frac{d\omega'}{4\pi} (1 - f_{\mathbf{e}}(\omega') - f_{\mathbf{h}}(\omega-\omega')) A_{\mathbf{ee}\mathbf{k}}(\omega') A_{\mathbf{hh},-\mathbf{k}}(\omega-\omega') \quad (8.27)$$

mit der Konstanten

$$C = \frac{8\pi E_{\mathbf{k}}'}{n(E_{\mathbf{k}}')c}. \quad (8.28)$$

Die Deltafunktionen (5.43) liefern eingesetzt in Gleichung (8.27)

$$\alpha_0(\omega) \simeq C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 (1 - f_{e\mathbf{k}} - f_{h,-\mathbf{k}}) \pi \delta(\omega - e_{e\mathbf{k}} - e_{h,-\mathbf{k}}). \quad (8.29)$$

Setzt man in Gleichung (8.27) für die Spektralfunktionen A anstelle der Deltafunktionen (5.43) die verbreiterten Zustandsdichten (5.29) ein, so ändert sich dadurch an der Funktion α_0 auf den ersten Blick nicht viel. Innerhalb des Frequenzbereiches direkter optischer Übergänge, also für $\omega > E'_g$, besteht aufgrund der Beziehung (5.34) wenig Unterschied zwischen den beiden Funktionen (8.27) und (8.29). Der Ausdruck (8.27) erfüllt sogar wie (8.29) die Summenregel

$$\int \frac{d\omega}{\pi} \alpha_0(\omega) = C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 (1 - n_{e\mathbf{k}} - n_{h,-\mathbf{k}}). \quad (8.30)$$

Darüberhinaus kann man sich davon überzeugen, daß der Nulldurchgang der Funktion (8.27), der die Bereiche der optischen Verstärkung und der Absorption trennt, wie in Gleichung (8.29) exakt am zusammengesetzten chemischen Potential $\mu = \mu_c - \mu_v$ liegt. Es handelt sich hierbei um eine allgemeingültige Beziehung, die auch unter Berücksichtigung der Elektron-Loch-Korrelation exakt erfüllt ist [10, Glg. (2.157)]:

$$\alpha(\omega = \mu) = 0. \quad (8.31)$$

Die Ursache für diese wichtige Tatsache liegt darin, daß es nicht die Blochzustände sondern die renormierten Zustände sind, die von den Elektronen gemäß Gleichgewichtsverteilungen bevölkert werden:

$$G_{jj\mathbf{k}}^{+-}(\omega) = \text{if}_j(\omega) A_{jj\mathbf{k}}(\omega) \neq \text{if}_{j\mathbf{k}} A_{jj\mathbf{k}}(\omega).$$

Experimentell läßt sich aufgrund von Gleichung (8.31) präzise das chemische Potential μ bestimmen. Dagegen kann die spektrale Position der renormierten Bandkante E'_g experimentell nicht genau festgelegt werden. Dies ist deshalb nicht möglich, da sich nach Gleichung (8.27) die kombinierte Zustandsdichte von Elektronen und Löchern aufgrund der Verbreiterung der Energieniveaus der Blochzustände auch in den Bereich unterhalb der renormierten Bandkante erstreckt, so daß die Funktion α_0 für $\omega < E'_g$ nicht völlig verschwindet. In diesem niederenergetischen Ausläufer des Absorptionsspektrums liegt der Hauptunterschied zwischen den Funktionen (8.27) und (8.29).

Man hat den niederenergetischen Ausläufer des Absorptionsspektrums häufig auf folgende allerdings unbedingende Weise berücksichtigt: da die Spektralfunktionen A in Gleichung (8.27) ihre Maxima in der Nähe der Quasiteilchenenergien $e_{j\mathbf{k}}$ annehmen, sollte man die Fermifunktionen näherungsweise vor das Frequenzintegral ziehen können

gemäß

$$\alpha_0(\omega) \simeq C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 (1 - f_{e\mathbf{k}} - f_{h,-\mathbf{k}}) \int \frac{d\omega'}{4\pi} A_{ee\mathbf{k}}(\omega') A_{hh,-\mathbf{k}}(\omega - \omega'). \quad (8.32)$$

In der Approximation (5.32) statisch verbreiteter Spektralfunktionen wird der Ausdruck (8.32) dann zu

$$\alpha_0(\omega) \simeq C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 (1 - f_{e\mathbf{k}} - f_{h,-\mathbf{k}}) \frac{\Gamma_{ee\mathbf{k}} + \Gamma_{hh,-\mathbf{k}}}{(\omega - e_{e\mathbf{k}} - e_{h,-\mathbf{k}})^2 + (\Gamma_{ee\mathbf{k}} + \Gamma_{hh,-\mathbf{k}})^2}. \quad (8.33)$$

Gleichung (8.33) ist die bekannte Landsberg-Approximation der Absorptionskonstanten. Dieser Ausdruck ist mit $\gamma_{\mathbf{k}} = \Gamma_{ee\mathbf{k}} + \Gamma_{hh,-\mathbf{k}}$ auf der Form des Imaginärteils der Funktion (7.17) aus der quasistatischen Approximation. Einer der Nachteile dieser Näherung besteht darin, daß sie die exakte Beziehung (8.31) verletzt, die den einzigen festen Orientierungspunkt des Problems darstellt. Ferner erweist sich der auf diese Weise berechnete niederenergetische Ausläufer des Absorptionsspektrums als strukturlos. Im folgenden wird eine verbesserte Näherung zu Gleichung (8.27) abgeleitet, die die Beziehung (8.31) erfüllt und die darüberhinaus Plasmon-Phonon-Seitenbanden im Spektrum der optischen Verstärkung liefert.

8.3 Die frequenzabhängige Stoßverbreiterung der Spektralfunktionen

Die Spektralfunktion (5.29) berücksichtigt die Selbstenergie der Ladungsträger in beliebig hoher Ordnung. Dies wird sich im folgenden auch als notwendig erweisen. Die Auswertung von Gleichung (8.27) mit den Funktionen (5.29) und (6.60) ist jedoch numerisch recht aufwendig. Andere Autoren [76, 77] haben deshalb eine Näherung der Spektralfunktion verwendet, die die dynamischen Korrelationseffekte genau in erster Ordnung berücksichtigt. Die resultierende störungstheoretische Form des Absorptionsspektrums weist jedoch eine unphysikalische Divergenz auf. In der vorliegenden Arbeit wird ein Weg aufgezeigt werden, auf dem dieses störungstheoretische Artefakt vermieden werden kann. Das Ergebnis stellt in gewisser Weise einen Kompromiß zwischen Gleichung (8.27) und der störungstheoretischen Formel dar. Zu einer Näherung der Spektralfunktion der Ladungsträger, Glg. (5.29), die dynamische Korrelationseffekte in erster Ordnung berücksichtigt, gelangt man durch eine Entwicklung der retardierten Greenschen Funktion (5.21). Hierbei wäre es ungünstig, die

gesamte Selbstenergie Σ^r als klein zu betrachten. Richtiger ist, nur den dynamischen Anteil

$$\Sigma_{jjk}^r(\omega) - \Delta_{jjk} = \Sigma_{jjk}^r(\omega) - \text{Re } \Sigma_{jjk}^r(e_{jk})$$

als Entwicklungsparameter zu verwenden:

$$G_{jjk}^r(\omega) \simeq \frac{1}{\omega - e_{jk} + i\delta} \left[1 + \frac{\Sigma_{jjk}^r(\omega) - \text{Re } \Sigma_{jjk}^r(e_{jk})}{\omega - e_{jk} + i\delta} \right]. \quad (8.34)$$

Diese Entwicklung nennt man eine 'verschobene' Störungsentwicklung ('Shifted Perturbation Expansion') [12, §4.2], da die auf der rechten Seite der Näherung (8.34) auftretenden Greenschen Funktionen nicht die nackten Greenschen Funktionen sind, sondern die Funktionen der Quasiteilchennäherung, die bereits die Renormierung der Einteilchenenergien berücksichtigen. Bei der Berechnung der Spektralfunktion nach Definition (5.8) in der Näherung (8.34) muß die Polstruktur der Greenschen Funktion (8.34) sehr genau behandelt werden [10, Glg. (2.101)]. Ich zitiere hier lediglich das Ergebnis:

$$A_{jjk}(\omega) = 2\pi (1 - P_{jk}) \delta(\omega - e_{jk}) + \frac{\partial}{\partial e_{jk}} P \frac{2\Gamma_{jjk}(\omega)}{\omega - e_{jk}}. \quad (8.35)$$

In dieser Näherung hat man eine spektrale Zerlegung der Funktion (5.29) in einen Quasiteilchenanteil und in einen dynamischen Korrelationsanteil erreicht. Der erste Beitrag in Gleichung (8.35) ist proportional zur Spektralfunktion in der Quasiteilchenapproximation, Glg. (5.43). Das spektrale Gewicht dieses Beitrags ist jedoch um die Größe

$$P_{jk} = \int \frac{d\omega}{2\pi} \frac{\partial}{\partial e_{jk}} P \frac{2\Gamma_{jjk}(\omega)}{\omega - e_{jk}} \\ = - \frac{\partial \text{Re} \Sigma_{jjk}^r(e_{jk})}{\partial e_{jk}} \quad (8.36)$$

vermindert (vgl. [12, Glg. (3.61) ff.]). Für die zweite Form des Ausdrucks (8.36) wurde die Spektraldarstellung (5.36) der retardierten Selbstenergie verwendet. Das fehlende

spektrale Gewicht enthält der zweite Term in der Zerlegung (8.35), der, wie sich zeigen wird, die Plasmon-Phonon-Seitenbanden liefert. Die Näherung (8.35) der Spektralfunktion erfüllt die Summenregel (5.34). Ferner erhält man mit Gleichung (8.35) auch die Beziehung (5.46) für die Teilchendichten [12, Glg. (4.63)]. Durch diese Eigenschaften wirkt die Zerlegung (8.35) zunächst sehr vorteilhaft. In den Gleichungen (8.35) und (8.36) tritt die Ableitung des Hauptwertes

$$\frac{\partial}{\partial x} \frac{P}{x} = \left(\frac{\partial}{\partial x} \frac{x}{x^2 + \delta^2} \right)_{\delta \rightarrow 0} \quad (8.37)$$

auf, die die Verwendung der Näherung (8.35) etwas kompliziert macht. Keineswegs kann man aber den Ausdruck (8.37) durch $-1/x^2$ ersetzen, da dann das Integral (8.36) divergiert. Für $\omega \neq e_{jk}$ ist die Funktion (8.35) unproblematisch:

$$A_{jjk}(\omega) = \frac{2\Gamma_{jjk}(\omega)}{(\omega - e_{jk})^2} \quad (8.38)$$

für $\omega \neq e_{jk}$.

Der Ausdruck (8.38) im Vergleich zu Gleichung (5.29) zeigt ganz deutlich, was durch die Störungsentwicklung (8.34) bewirkt wird: die vollständige Spektralfunktion (5.29) beschreibt für $\omega \neq e_{jk}$ die dynamischen Korrelationsanteile des Spektrums, wirkt aber für $\omega \approx e_{jk}$ mit dem Term Γ^2 im Nenner auch als 'verbreiterte δ -Funktion' und liefert so die Quasiteilchenresonanz. In der Form (8.38) dagegen fehlt der Term Γ^2 im Nenner, weshalb diese Funktion nur das Seitenband beschreibt, während das Quasiteilchenband in Gleichung (8.35) separat auftritt.

8.4 Plasmon-Phonon-Seitenbanden im Absorptionsspektrum: die störungstheoretische Formel

Die Spektralfunktion (8.35) soll nun zur Berechnung des Absorptionskoeffizienten α_0 , Glg. (8.27), verwendet werden. Dabei müssen die entstehenden Terme zweiter Ordnung bezüglich der Funktion Γ vernachlässigt werden, da die Entwicklung (8.34) die dynamischen Korrelationseffekte nur in erster Ordnung berücksichtigt. Aus der Zerlegung der Spektralfunktion der Ladungsträger in den Quasiteilchenanteil und den dynamischen Korrelationsanteil ergibt sich eine entsprechende Zerlegung des Absorptionsspektrums:

$$\alpha_0(\omega) = \alpha_0^d(\omega) + \alpha_0^s(\omega). \quad (8.39)$$

Hierin bezeichnet 'd' das Hauptband der direkten Übergänge, und 's' bezeichnet das Satellitenband. Das Hauptband ist gegeben durch

$$\alpha_0^d(\omega) = C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 (1 - P_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - P_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) (1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) \pi \delta(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}). \quad (8.40)$$

Nach Gleichung (8.40) ist das spektrale Gewicht der direkten optischen Übergänge vermindert um den Faktor $(1 - P_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - P_{\mathbf{h},-\mathbf{k}})$. Dieses spektrale Gewicht ist ausgelagert in das Satellitenband

$$\alpha_0^s(\omega) = C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 [1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - f_{\mathbf{h}}(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}})] \Gamma_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}}) \frac{\partial}{\partial \omega} \frac{P}{e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} + e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} - \omega} \quad (8.41a)$$

$$+ (e \longleftrightarrow h).$$

Anstelle von Gleichung (8.41a) kann unterhalb der renormierten Bandkante auch

$$\alpha_0^s(\omega) = C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 \frac{[1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - f_{\mathbf{h}}(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}})] \Gamma_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}})}{(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}})^2} + (e \longleftrightarrow h) \quad (8.41b)$$

$$\text{für } \omega < E'_g$$

geschrieben werden. Diese Formel ist sehr ähnlich zur Landsberg-Approximation (8.33), besitzt aber eine tiefere Bedeutung als diese. Unter Verwendung von Gleichung (6.60) läßt sich Gleichung (8.41b) umschreiben zu

$$\alpha_0^s(\omega) = C \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \left(\frac{|\mu_{\mathbf{k}}|^2}{(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}})^2} + \frac{|\mu_{\mathbf{k}'}|^2}{(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'})^2} \right) \quad (8.42)$$

$$\propto \text{Im } V_{\mathbf{e}\mathbf{q}}(\omega') [f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} (1 + g(\omega')) - (1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'})(1 - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) g(\omega')]]$$

$$\text{für } \omega < E'_{\mathbf{g}},$$

mit den Abkürzungen

$$\omega' = e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} + e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} - \omega, \quad (8.43)$$

$$\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'.$$

Beim Übergang von Gleichung (8.41b) zu Gleichung (8.42) wurden die Identitäten

$$[f_{\mathbf{e}}(e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - \omega') + f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} - 1] [g(\omega') + f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}] \quad (8.44)$$

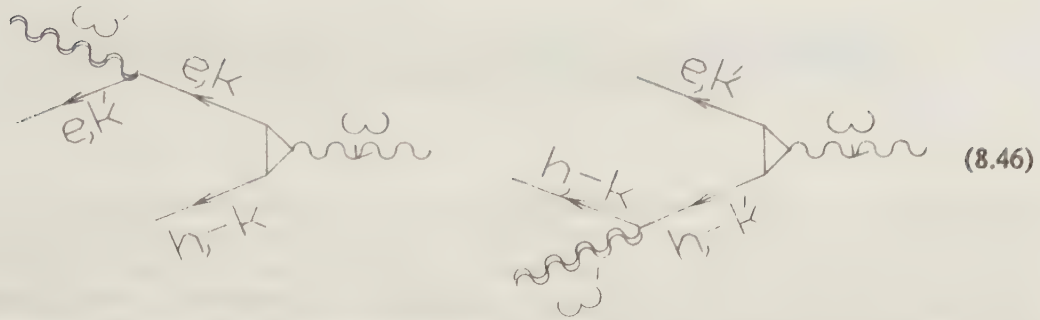
$$= [f_{\mathbf{h}}(e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} - \omega') + f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - 1] [g(\omega') + f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}]$$

$$= f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} (1 + g(\omega')) - (1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'})(1 - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) g(\omega')$$

verwendet. Mit Hilfe dieser Identitäten gelangt man zu einer physikalischen Interpretation der Formel (8.42). Der erste Term in der dritten Zeile in Gleichung (8.44) ist der Besetzungszahlfaktor für die Rekombination eines Elektron-Loch-Paares unter spontaner ($\propto 1$) oder stimulierter ($\propto g(\omega')$) Emission einer longitudinalen Anregung des Vielteilchensystems. Diese indirekten Rekombinationsprozesse lassen sich veranschaulichen durch die Diagramme



Der zweite Term in der dritten Zeile von Gleichung (8.44) ist der Besetzungszahlfaktor für die zugehörigen indirekten Absorptionsprozesse



Bei dieser Interpretation der Formel (8.42) ist allerdings zu beachten, daß die Faktoren $(1+g(\omega'))$ und $g(\omega')$ wegen

$$g(\omega) = - (1 + g(-\omega))$$

bei einem Vorzeichenwechsel der Energie ω' , Glg. (8.43), ihre Bedeutung vertauschen. In den Prozessen (8.45) und (8.46) sind die Zustände $|ek\rangle$ und $|h,-k\rangle$ virtuelle Zwischenzustände, deren Besetzungszahlen in die Formel (8.42) nicht eingehen. Der direkte optische Übergang ist in diesen Prozessen also virtuell und zeigt sich nur in den Energienennern in Gleichung (8.42).

Zur weiteren Erläuterung von Gleichung (8.42) soll die Spektralfunktion $A_s = -2\text{Im}V_s^r$ des abgeschirmten Coulombpotentials in der Plasmonpol-Näherung (6.38) betrachtet werden. Nach Gleichung (8.43) gilt dann für die Photonenergie ω

$$\omega = e_{ek'} + e_{h,-k} \pm \omega_q \quad (8.47)$$

mit $q=k-k'$. Für die Photonemission ist Gleichung (8.47) die Energiebilanz bei der Rekombination eines Elektron-Loch-Paares unter Vernichtung (+) oder Erzeugung (-) eines Plasmons. Für die Photonabsorption ist Gleichung (8.47) die Energiebilanz bei der Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares unter Erzeugung (+) oder Vernichtung (-) eines Plasmons. Bei tiefen Temperaturen mit $k_B T \ll \omega_p$, bei denen keine thermisch angeregten Plasmonen vorhanden sind, findet plasmonassistierte Absorption von Photonen folglich nur für $\omega > E_g + \omega_p$ statt. Für die plasmonassistierte Emission von Photonen dagegen kommt für tiefe Temperaturen nur das "-"-Zeichen in Gleichung (8.47) in Betracht. Gleichung (8.47) zeigt, daß die Frequenz ω eines emittierten Photons bei simultaner Emission eines Plasmons unterhalb der renormierten Bandlücke liegen kann. Hieraus ergibt sich die Möglichkeit des Auftretens eines Plasmonsatelliten im Spektrum der optischen Verstärkung.

8.5 Plasmon-Phonon-Seitenbanden im Absorptionsspektrum: eine nichtstörungstheoretische Formel

Die Zerlegung (8.39) des Absorptionsspektrums in die Anteile der direkten und der plasmonassistierten optischen Übergänge, die durch die Störungsentwicklung (8.34) erreicht wurde, ist sehr systematisch und wirkt vorteilhaft. Man wird jedoch schnell auf einen schweren Defekt dieses Approximationsschemas aufmerksam. Keine Probleme treten zunächst für tiefe Temperaturen und nicht zu hohe Plasmadichten auf. Im entarteten Grenzfall ist das zusammengesetzte chemische Potential $\mu = \mu_e + \mu_h$, gemessen von der renormierten Bandkante, nach Gleichung (6.23) gegeben durch

$$\bar{\mu} = \frac{k_F^2}{2m} = \frac{(3\pi^2 n)^{2/3}}{2m} \quad (8.48)$$

mit $\bar{\mu} = \mu - E_g'$. Bei relativ niedrigen Dichten ist folglich die Plasmafrequenz ω_p , Glg. (6.27), die proportional zu $n^{1/2}$ ist, größer als das chemische Potential $\bar{\mu}$. In diesem Fall sind nach Gleichung (8.47) das Hauptband der direkten optischen Übergänge und der Plasmonsatellit spektral voneinander getrennt. Für höhere Dichten oder für endliche Temperaturen dagegen erstreckt sich das Seitenband bis zum Hauptband und verschmilzt mit diesem. Man stellt jedoch bei Betrachtung von Gleichung (8.41) fest, daß das störungstheoretische Spektrum in diesem Fall für $\omega \rightarrow E_g'$ divergiert. Die Ursache für diese Divergenz ist, daß die Entwicklung (8.34) nur möglich ist, sofern die Differenz $\omega - e_{jk}$ hinreichend groß ist. Die Divergenz des störungstheoretischen Spektrums tritt gerade bei der Frequenz auf, bei der aus den direkten optischen Übergängen, die in den Prozessen (8.45) und (8.46) virtuell sind und durch die Energienenner in Gleichung (8.42) beschrieben werden, reelle Übergänge werden. In früheren Arbeiten [76, 77] wurde bei der Verwendung der Formeln (8.40) und (8.41) einfach durch den divergenten Bereich $\omega \simeq E_g'$ interpoliert. Durch den Vergleich der Formeln (5.29) und (8.38) für die Spektralfunktion der Ladungsträger sowie der Gleichungen (8.33) und (8.41) für den Absorptionskoeffizienten erscheint es aber ganz evident, auf welche Weise die Divergenz der Störungstheorie an der Bandkante behoben werden kann: offensichtlich fehlt in Gleichung (8.41) nur der Term $(\Gamma_{ek} + \Gamma_{h,-k})^2$ im Nenner. Fügt man diesen Term ein, so ist nicht nur die Divergenz behoben, sondern Gleichung (8.41) kann neben dem Plasmonsatelliten in stetiger Weise auch das Hauptband der direkten optischen Übergänge beschreiben. Bezüglich der direkten Übergänge ist die Situation dann ähnlich wie im Falle der Spektralfunktion des abgeschirmten Coulombpotentials, Glg. (6.18): dort ist bei endlichen Temperaturen die Plasmonmode rechnerisch hinter Einteilchenstreuungen verborgen, hier erhält man die direkten optischen Übergänge versteckt in der Form (8.42) plasmonassistierter optischer Übergänge.

Bei der Ergänzung des Dämpfungstermes $(\Gamma_{ek} + \Gamma_{h,-k})^2$ in Gleichung (8.41) ist lediglich die Wahl des Frequenzargumentes der Dämpfungskonstanten im Nenner etwas willkürlich. Auf diese Unsicherheit wird später (s. Glg. (8.58)) noch einmal zurückgekommen. Mir schien die folgende Form der Verallgemeinerung von Gleichung (8.41) plausibel:

$$\alpha_0^s(\omega) \rightarrow \alpha_0(\omega) = C \sum_{\mathbf{k}} |\mu_{\mathbf{k}}|^2 \frac{[1 - f_{e\mathbf{k}} - f_h(\omega - e_{e\mathbf{k}})] \Gamma_{h,-\mathbf{k}}(\omega - e_{e\mathbf{k}})}{(\omega - e_{e\mathbf{k}} - e_{h,-\mathbf{k}})^2 + [\Gamma_{e\mathbf{k}}(e_{e\mathbf{k}}) + \Gamma_{h,-\mathbf{k}}(\omega - e_{e\mathbf{k}})]^2} + (e \longleftrightarrow h). \quad (8.49)$$

Eine ähnliche Formel für das Absorptionsspektrum wurde auch in der Arbeit [68] verwendet. Der Ausdruck (8.49) ist nicht nur frei von störungstheoretischen Artefakten, sondern auch rechnerisch einfacher zu behandeln als die Formeln (8.40) und (8.41). Die Gleichung (8.49) ähnelt der Landsberg-Approximation (8.33). Während die Landsberg-Approximation aber nur diffus verbreiterte direkte optische Übergänge liefert, wird durch den Ausdruck (8.49) das Ausschmieren der Bandkante aufgelöst als Folge indirekter optischer Übergänge. Die Überlegenheit der Approximation (8.49) gegenüber der Landsberg-Approximation kommt auch darin zum Ausdruck, daß (8.49) die wichtige exakte Beziehung (8.31) erfüllt.

8.6 Der Beitrag der Vertexkorrektur in der störungstheoretischen Form

Die störungstheoretische Formel (8.41) berücksichtigt plasmon-phonon-assistierte optische Übergänge in erster Ordnung bezüglich der Spektralfunktion $A_s = -2\text{Im}V_s^r$ des abgeschirmten Coulombpotentials. Fügt man das erste Diagramm in (8.45) mit dem ersten Diagramm in (8.46) und das zweite Diagramm in (8.45) mit dem zweiten Diagramm in (8.46) zusammen, so entstehen die Beiträge



zur transversalen Polarisationsfunktion. Neben diesen Selbstenergiekorrekturen trägt aber zur Photonselbstenergie in erster Ordnung bezüglich des abgeschirmten Coulombpotentials auch die Vertexkorrektur



(vgl. Glg. (7.33)) bei, die entsteht, wenn man die Diagramme in (8.45) und (8.46) über Kreuz zusammenfügt. Die Auswertung des Diagramms (8.51) ist langwierig. Ich zitiere hier nur das Ergebnis [12, App.I]. Unterhalb der Bandkante trägt lediglich die Größe $\Delta V_s = V_s - V$ zu (8.51) bei, und man erhält

$$\alpha_1^s(\omega) = -C \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \frac{\mu_{\mathbf{k}} \mu_{\mathbf{k}'}^* + \mu_{\mathbf{k}'} \mu_{\mathbf{k}}^*}{(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}})(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'})} \quad (8.52)$$

$$\times \text{Im } V_{\mathbf{s}\mathbf{q}}(\omega') [f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} (1 + g(\omega')) - (1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}) (1 - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) g(\omega')]$$

$$\text{für } \omega < E'_g$$

mit

$$\omega' = e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} + e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} - \omega,$$

$$\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'.$$

Die beiden Ausdrücke (8.42) und (8.52) ergänzen sich zu

$$\alpha_0^s(\omega) + \alpha_1^s(\omega) = C \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \left| \frac{\mu_{\mathbf{k}}}{\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}} - \frac{\mu_{\mathbf{k}'}}{\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}} \right|^2 \quad (8.53)$$

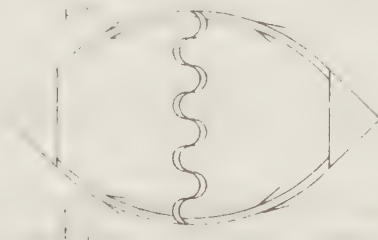
$$\times \text{Im } V_{\mathbf{s}\mathbf{q}}(\omega') [f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} (1 + g(\omega')) - (1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}) (1 - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) g(\omega')]$$

$$\text{für } \omega < E'_g.$$

Die erstaunliche Art und Weise, auf die sich die Terme (8.42) und (8.52) ergänzen, unterstreicht ein weiteres Mal die strenge Beziehung zwischen Selbstenergiekorrekturen und Vertexkorrekturen. Gleichung (8.53) zeigt, daß sich die Beiträge (8.42) und (8.52) zu einem großen Teil gegenseitig kompensieren. Das hohe Maß an Kompensation zwischen Selbstenergiekorrekturen und Vertexkorrekturen war bereits in Abschnitt 7.4 für die Konstanz der Exzitonenergie von Bedeutung.

8.7 Eine nichtstörungstheoretische Form der Vertexkorrektur

Entsprechend der Gleichung (8.49) wird nun eine nichtstörungstheoretische Form der Vertexkorrektur (8.52) benötigt. Diese erhält man, indem man in dem Diagramm (8.51) anstelle der nackten Greenschen Funktionen renormierte Greensche Funktionen einführt:


(8.54)

Rechnerisch geschieht dies mit Hilfe der Spektraldarstellung (5.35) der Greenschen Funktionen. Hierdurch geht der Ausdruck (8.52) über in

$$\alpha_1^a(\omega) \rightarrow \alpha_1^a(\omega) = -C \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} (\mu_{\mathbf{k}} \mu_{\mathbf{k}'}^* + \mu_{\mathbf{k}'} \mu_{\mathbf{k}}^*) \quad (8.55)$$

$$\times \int \frac{d\omega_e}{2\pi} \int \frac{d\omega_h}{2\pi} \int \frac{d\omega'_e}{2\pi} \int \frac{d\omega'_h}{2\pi} P \frac{A_{e\mathbf{k}}(\omega_e) A_{h,-\mathbf{k}}(\omega_h)}{\omega - \omega_e - \omega_h} P \frac{A_{e\mathbf{k}'}(\omega'_e) A_{h,-\mathbf{k}'}(\omega'_h)}{\omega - \omega'_e - \omega'_h}$$

$$\times \text{Im } V_{\mathbf{e}\mathbf{q}}(\omega') [f_e(\omega'_e) f_h(\omega_h) (1 + g(\omega')) - (1 - f_e(\omega'_e)) (1 - f_h(\omega_h)) g(\omega')]]$$

mit

$$\omega' = \omega'_e + \omega_h - \omega,$$

$$\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'.$$

Da die letzte Zeile in Gleichung (8.55) nicht von ω_e und nicht von ω'_h abhängt, läßt sich die Integration über diese Frequenzen durchführen und es entsteht die etwas einfachere

Form

$$\alpha_1^s(\omega) = -C \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} (\mu_{\mathbf{k}} \mu_{\mathbf{k}'}^* + \mu_{\mathbf{k}'} \mu_{\mathbf{k}}^*) \quad (8.56)$$

$$\times \int \frac{d\omega_h}{2\pi} \int \frac{d\omega'_e}{2\pi} \operatorname{Re} G_{\mathbf{e}\mathbf{k}}^r(\omega - \omega_h) \operatorname{Re} G_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}^r(\omega - \omega'_e) A_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}(\omega'_e) A_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}(\omega_h)$$

$$\times \operatorname{Im} V_{\mathbf{e}\mathbf{q}}(\omega') [f_{\mathbf{e}}(\omega'_e) f_{\mathbf{h}}(\omega_h) (1 + g(\omega')) - (1 - f_{\mathbf{e}}(\omega'_e)) (1 - f_{\mathbf{h}}(\omega_h)) g(\omega')].$$

Um die restlichen beiden Frequenzintegrationen durchführen zu können, sei zunächst die letzte Zeile in Gleichung (8.56) durch ihren Wert bei $\omega'_e = e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}$ und $\omega_h = e_{\mathbf{h}\mathbf{k}}$ ersetzt, denn dies sind die dominanten Frequenzen des Integranden. Die verbleibenden Integrationen seien genähert gemäß

$$\int \frac{d\omega'_e}{2\pi} \operatorname{Re} G_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}^r(\omega - \omega'_e) A_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}(\omega'_e) \quad (8.57)$$

$$= \int \frac{d\omega'_e}{2\pi} \operatorname{Re} \frac{1}{\omega - \omega'_e - \epsilon_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'} - \Sigma_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}^r(\omega - \omega'_e)} \frac{2\Gamma_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}(\omega'_e)}{|\omega'_e - \epsilon_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - \Sigma_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}^r(\omega'_e)|^2}$$

$$\simeq \int \frac{d\omega'_e}{2\pi} \operatorname{Re} \frac{1}{\omega - \omega'_e - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'} + i\Gamma_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'})} \frac{2\Gamma_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}(e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'})}{(\omega'_e - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'})^2 + \Gamma_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}^2(e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'})}$$

$$= \frac{\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}}{(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'})^2 + [\Gamma_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}(e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}) + \Gamma_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'})]^2}.$$

Das Ergebnis für die Vertexkorrektur lautet somit

$$\alpha_1^2(\omega) = -C \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} (\mu_{\mathbf{k}} \mu_{\mathbf{k}'}^* + \mu_{\mathbf{k}'} \mu_{\mathbf{k}}^*) \quad (8.58)$$

$$\times \frac{\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}}{(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}})^2 + [\Gamma_{\mathbf{e}\mathbf{k}}(\omega - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) + \Gamma_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}(e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}})]^2}$$

$$\times \frac{\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}}{(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'})^2 + [\Gamma_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}(e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}) + \Gamma_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}(\omega - e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'})]^2}$$

$$\times \text{Im } V_{\mathbf{a}\mathbf{q}}(\omega') [f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} (1 + g(\omega')) - (1 - f_{\mathbf{e}\mathbf{k}'}) (1 - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}) g(\omega')]]$$

mit

$$\omega' = e_{\mathbf{e}\mathbf{k}'} + e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} - \omega,$$

$$\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'.$$

Die gegebene Herleitung für diese nichtstörungstheoretische Form der Vertexkorrektur spricht für die Wahl der Frequenzargumente der Dämpfungsterme im Nenner der Funktion (8.49). Wie (8.49) ist der Ausdruck (8.58) symmetrisch bezüglich der Indizes $\mathbf{e}$ und $\mathbf{h}$. Ein möglicher Kritikpunkt, der noch zu diskutieren sein wird (s. (8.77)), besteht allerdings darin, daß zwischen den Ausdrücken (8.49) und (8.58) für $\mathbf{k}=\mathbf{k}'$ keine exakte Kompensation wie in Gleichung (8.53) vorliegt.

Gegenüber der störungstheoretischen Form (8.52) der Vertexkorrektur sind in Gleichung (8.58) die Energienenner nach der Regel

$$\frac{P}{\omega} \rightarrow \frac{\omega}{\omega^2 + \Gamma^2} \quad (8.59)$$

gedämpft (vgl. Glg. (3.61)). In dieser Form läßt sich Gleichung (8.58) wie Gleichung (8.49) ohne weiteres auch oberhalb der Bandkante verwenden. Die Summe der Ausdrücke (8.49) und (8.58) stellt den Absorptionskoeffizienten des Elektron-Loch-Plasmas aufgrund direkter und Plasmon-Phonon-assistierter optischer Übergänge dar.

Die Vertexkorrektur (8.58) ist nicht als ein Beitrag der exzitonenischen Verstärkung des Spektrums anzusehen. Die Coulomb-Verstärkung aufgrund der Elektron-Loch-Anziehung ist in dieser Theorie noch gar nicht enthalten. Bei der Herleitung dieser Theorie war ich davon überzeugt, daß die exzitonenische Verstärkung direkte und indirekte optische Übergänge gleichermaßen betreffen muß, denn anders ist der stetige Übergang zwischen

Haupt- und Seitenband, den die Formeln (8.49) und (8.58) liefern, nicht denkbar. Während in den früheren Berechnungen zu diesem Problem eine exzitonische Verstärkung nur für die direkten optischen Übergänge in Betracht gezogen wurde [76, 77], bestätigt die neueste Formulierung der Theorie von R. Zimmermann meine Einschätzung [10, Glg. (5.90) ff.]. Wird aber das gesamte optische Spektrum durch die exzitonische Verstärkung angehoben, so ist es weniger gravierend, wenn die Coulombverstärkung, wie hier geschehen, ganz außer acht gelassen wird, denn dann fehlt lediglich ein gemeinsamer Faktor, der für hohe Plasmadichten und nicht zu tiefe Temperaturen relativ schwach von der Frequenz abhängt.

8.8 Die Auswertung der Theorie im entarteten Grenzfall

Die Auswertung der Formeln (8.49) und (8.58) ist etwas aufwendig. Bereits die Dämpfungsterme $\Gamma_{jjk}(\omega)$ können unter Verwendung von Gleichung (6.60) nur numerisch berechnet werden. Anschließend ist in Gleichung (8.58) noch eine dreifache Integration auszuführen. Da die experimentellen Spektren nur für tiefe Plasmatemperaturen definierte Strukturen unterhalb der Bandkante zeigen, beschränkte ich mich bei der Auswertung zunächst auf den numerisch etwas leichter behandelbaren entarteten Grenzfall $T=0K$. Dieses Vorgehen erscheint im Hinblick auf das Fehlen der exzitonischen Verstärkung in dieser Theorie etwas bedenklich, da ein entartetes Elektron-Loch-Plasma am absoluten Nullpunkt der Temperatur sicher in die Phase des exzitonischen Isolators kollabiert. Allerdings nimmt die kritische Temperatur dieses Phasenübergangs mit zunehmender Plasmadichte exponentiell ab, so daß die $T=0K$ -Berechnungen eventuell auf Plasmen kleiner endlicher Temperatur anwendbar sind. In den Experimenten lagen die Plasmatemperaturen jedenfalls oberhalb der kritischen Temperatur. Da die Unterschiede zwischen den $T=0K$ -Spektren und den experimentellen Ergebnissen sich schließlich doch als recht groß erwiesen, berechnete ich in einer späteren Analyse unter Verwendung weiterer Näherungen auch Spektren für endliche Plasmatemperaturen. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen werde ich in Abschnitt 8.9 diskutieren.

Im Grenzfall $T=0K$ ergeben sich für die numerische Auswertung einige Erleichterungen. Zunächst sei der Faktor der Besetzungszahlen (8.44) umgeschrieben gemäß

$$\begin{aligned} f_{ek'} f_{h,-k} (1 + g(\omega')) - (1 - f_{ek'}) (1 - f_{h,-k}) g(\omega') \\ = - g_{cv}^{-1}(\omega) f_{ek'} f_{h,-k} (1 + g(\omega')) \end{aligned} \quad (8.60a)$$

$$= - (1 + g_{cv}(\omega))^{-1} (1 - f_{ek'}) (1 - f_{h,-k}) g(\omega') \quad (8.60b)$$

mit der Verteilungsfunktion

$$g_{cv}(\omega) = \frac{1}{e^{\beta(\omega - \mu)} - 1} \quad (8.61)$$

Gleichung (8.60a) bringt zum Ausdruck, daß sich der Absorptionskoeffizient auch mit Hilfe der Formel für die Rate der spontanen Emission ausdrücken läßt, was ganz allgemein möglich ist [12, Glg. (2.68)]. Ebenso läßt sich der Absorptionskoeffizient nach Gleichung (8.60b) auch durch die Absorptionsrate ausdrücken. Die Bose-Einstein-Verteilung $g_{cv}(\omega)$, Glg. (8.61), übernimmt für das transversale Anregungsspektrum die Rolle, die die Planck-Verteilung $g(\omega)$ für das longitudinale Anregungsspektrum spielt (vgl. Glg. (6.12)). Der Vorzeichenwechsel der Funktion (8.61) am zusammengesetzten chemischen Potential $\mu = \mu_e + \mu_h$ der Ladungsträger bringt zum Ausdruck, daß das System für $\omega < \mu$ optisch invertiert ist. Für $T=0K$ gilt

$$\begin{aligned} g_{cv}(\omega) &= -1 && \text{für } \omega < \mu \\ &= 0 && \text{für } \omega > \mu. \end{aligned} \quad (8.62)$$

Folglich findet für $T=0K$ unterhalb des chemischen Potentials μ nach Gleichung (8.60a) nur Photonemission und oberhalb des chemischen Potentials nach Gleichung (8.60b) nur Photonabsorption statt. Beschränkt man sich auf den Bereich $\omega < \mu$ der optischen Verstärkung, so reduziert sich der Populationsfaktor (8.60) also zu

$$\begin{aligned} f_{ek'} f_{h,-k} (1 + g(\omega')) - (1 - f_{ek'}) (1 - f_{h,-k}) g(\omega') \\ = \theta(k_F - k') \theta(k_F - k) \theta(\omega') \end{aligned} \quad (8.63)$$

$$\text{für } T = 0K \quad \text{und} \quad \omega < \mu.$$

Während man bei endlichen Temperaturen über die steilen Flanken der Fermifunktionen zu integrieren hat, erhält man im $T=0K$ -Grenzfall mit der Beziehung (8.63) einen harmlosen Integranden und endliche Integrationsgrenzen. Zur numerischen Integration der Formeln (8.49) und (8.58) genügt dann eine einfache Gauß-Quadratur.

i) Der Vergleich von Plasmonpol-Spektren mit RPA-Spektren

Mein eigentliches Ziel war die Berechnung von Spektren mit Plasmon-Phonon-Seitenbanden. Hierzu beabsichtigte ich, für die Spektralfunktion $A_s = -2\text{Im}V_s^r$ die Plasmon-Phononpol-Approximation zu verwenden. Zuvor sollte jedoch überprüft werden, ob die Plasmonpol-Approximation für den Beitrag des Plasmas zur longitudinalen

dielektrischen Funktion in diesem Zusammenhang als Vereinfachung der Lindhard-Formel (RPA) verwendbar ist. Ich arbeitete folglich zunächst in der ϵ_0 -Approximation und verglich Spektren, die sich mit der Plasmonpol-Approximation ergaben, mit solchen, die ich mit der vollständigen Lindhard-Funktion erhielt. Als Materialparameter verwendete ich die Werte von Cadmiumsulfid (CdS), da an diesem Material Plasmon-Phonon-Satelliten im Spektrum der optischen Verstärkung am deutlichsten beobachtet worden waren. Die folgenden Werte sind der Arbeit [78] entnommen. Die dielektrischen Konstanten sind $\epsilon_\infty=5.86$ und $\epsilon_0=8.58$. In Cadmiumsulfid ist die Bandstruktur der Löcher stark anisotrop:

$$\epsilon_{hk} = \frac{k_x^2 + k_y^2}{2m_{hT}} + \frac{k_z^2}{2m_{hL}}. \quad (8.64)$$

Die effektiven Polaronmassen sind gegeben durch $m_e=0.205m_0$, $m_{hT}=0.7m_0$ und $m_{hL}=5.0m_0$. Die Berechnung von optischen Spektren wird bei Berücksichtigung der Anisotropie der Energiebänder sehr erschwert. Man verwendet deshalb in Modellrechnungen häufig eine isotrope Bandstruktur, in die man gewisse gemittelte effektive Massen einsetzt [79]. Ist eine $\mathbf{k}$ -Integration auszuführen, so verwendet man die Größe

$$m_h = (m_{hT}^2 m_{hL})^{1/3}. \quad (8.65)$$

Für CdS ist $m_h=1.348m_0$. Man nennt den Ausdruck (8.65) die Masse der Zustandsdichte, denn diese Größe geht in die Zustandsdichte

$$z_h(E) = \frac{1}{\pi^2} \sqrt{2m_{hT}^2 m_{hL} E} \quad (8.66)$$

des Lochbandes ein. Die Plasmafrequenz ω_p allerdings ist mit der sogenannten optischen Lochmasse

$$m_{h0} = 3 \left(\frac{2}{m_{hT}} + \frac{1}{m_{hL}} \right)^{-1} \quad (8.67)$$

zu bilden. Für CdS ist $m_{h0}=0.981m_0$. Man erhält den Ausdruck (8.67), wenn man Gleichung (6.26) als Definitionsgleichung für die Plasmafrequenz benutzt und die Lindhardfunktion (6.8) mit der Bandstruktur (8.64) auswertet. Mit der effektiven Elektronmasse und den gemittelten Lochmassen (8.65) und (8.67) bildet man die reduzierten Massen

$$m = \left[\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \right]^{-1}, \quad (8.68)$$

$$m_0 = \left[\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_{h0}} \right]^{-1}. \quad (8.69)$$

Für CdS ist $m=0.178m_0$ und $m_0=0.170m_0$. Da ich die Lindhard-Funktion jedoch ebenfalls in einem isotropen Modell berechnete, hatte ich beim Vergleich von Plasmonpol-Spektren mit RPA-Spektren in der Plasmafrequenz die reduzierte Masse (8.68) anstelle der reduzierten optischen Masse (8.69) zu verwenden. Der hieraus resultierende Unterschied ist ohnehin gering. Die Ersetzung der Größe m durch m_0 in der Plasmafrequenz nahm ich deshalb erst nach dem Vergleich der Plasmonpol-Spektren mit den RPA-Spektren vor.

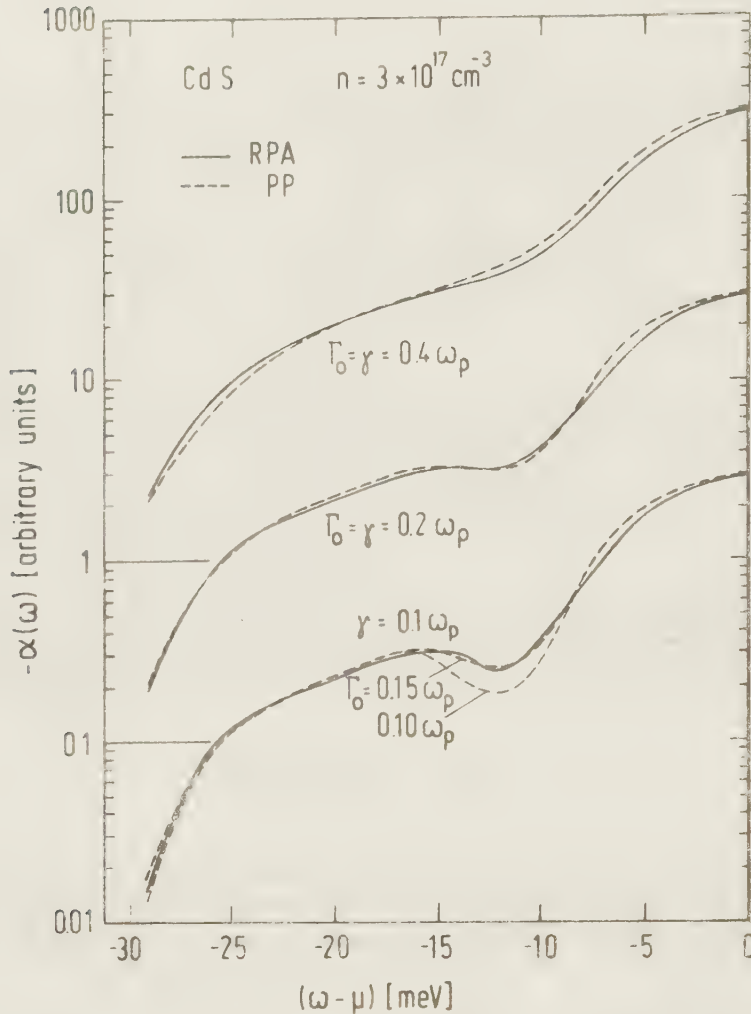
Bei der Berechnung des Absorptionsspektrums nach den Formeln (8.49) und (8.58) wurde die schwache k -Abhängigkeit des optischen Matrixelementes μ_k vernachlässigt. Ferner wurde das Spektrum so skaliert, daß es sich ohne dynamische Korrelationseffekte zu

$$\alpha(\omega) \rightarrow [1 - 2\theta(\mu - \omega)] \sqrt{\omega - E'_g} \quad (8.70)$$

ergeben würde. Der absolute Wert der Absorptionskonstanten bleibt zunächst unbestimmt, da die exzitonische Verstärkung des Spektrums nicht berücksichtigt ist. Durch Vergleich mit den experimentellen Spektren kann später unter Verwendung der Formel (2.63) für das optische Matrixelement die Coulombverstärkung abgeschätzt werden.

Figur 8.2 zeigt einige berechnete Spektren für den Koeffizienten der optischen Verstärkung, $-\alpha(\omega)$. Ich wählte die logarithmische Darstellung, da der Verstärkungskoeffizient direkter optischer Übergänge um eine Größenordnung höher ist als der der indirekten optischen Übergänge. Als durchgezogene Linie ist jeweils dasjenige Spektrum zu sehen, das sich mit der Lindhard-Mermin-Formel (6.16) ergibt, und gestrichelt dargestellt ist das Spektrum, das ich mit der gedämpften Plasmonpol-Approximation (6.41) erhielt. Gezeigt sind, jeweils um eine Größenordnung gegeneinander versetzt, Paare von Spektren zu verschiedener Wahl der Dämpfungskonstanten γ in Formel (6.16) bzw. Γ_0 in Gleichung (6.41). Das chemische Potential beträgt in diesen Spektren $\mu = \mu - E'_g \approx 9.2 \text{ meV}$. Dies entspricht mit der Näherung (5.46) einer Plasmadichte von $n \approx 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Für die Plasmafrequenz erhält man damit $\omega_p \approx 16.6 \text{ meV}$. Da die Plasmafrequenz bei dieser Ladungsträgerdichte also größer ist als das chemische Potential μ , ist unterhalb der Bandkante und spektral vom Hauptband getrennt ein Plasmonsatellit erkennbar. Diese Struktur liegt, da die kombinierte Zustandsdichte der Ladungsträger am größten im Bereich der Fermikante ist, nach Gleichung (8.47) etwa bei der Frequenz

$$\omega = \mu - \omega_p. \quad (8.71)$$



Figur 8.2. Spektren der optischen Verstärkung in CdS mit Plasmon-Seitenbanden in RPA-Näherung und in Plasmonpol-Näherung (PP) für verschiedene Plasmon-Dämpfungskonstanten γ und Γ_0 .

Im langwelligen Grenzfall $q \rightarrow 0$ stimmen die Lindhard-Mermin-Formel (6.16) und die Plasmonpol-Näherung (6.41) für $\Gamma_0 = \gamma/2$ überein. Es sind jedoch in allen Fällen größere Werte von Γ_0 notwendig, um eine gute Übereinstimmung zwischen den Spektren zu erzielen. Dies ist, wie die zusätzliche Kurve für $\Gamma_0 = 0.1\omega_p$ zeigt, vor allem für die Wahl kleiner Dämpfungsparameter der Fall, denn mit kleiner werdenden Dämpfungskonstanten γ und Γ_0 tritt das Plasmonseitenband immer deutlicher hervor. Im Grenzfall einer verschwindenden Dämpfungskonstanten Γ_0 entsteht im Rahmen der Plasmonpol-Approximation eine Lücke $\mu - \omega_p < \omega < E'_g$ zwischen dem Hauptband der direkten optischen Übergänge und dem Plasmonsatelliten. Mit Hilfe der Lindhard-Mermin-Formel dagegen erhält man auch für $\gamma \rightarrow 0$ noch Beiträge in diesem Frequenzbereich, da das Spektrum der Einteilchenstreuungen auch niederenergetische Anregungen bis hin zu verschwindendem Energieübertrag enthält. Für die optische Verstärkung sind hier die Prozesse



verantwortlich. Diese werden durch den Populationsfaktor (8.60) und die Spektralfunktion $A_s = -2\text{Im}V_s^r$ mitbeschrieben gemäß der Identität (6.10).

Der Verlauf des Hauptbandes ist näherungsweise durch den Ausdruck (8.70) gegeben. Für $\omega \rightarrow \mu$ verschwindet die Vertexkorrektur (8.58) sowie die Dämpfungsterme Γ in Gleichung (8.49), und Gleichung (8.49) geht exakt in den Ausdruck (8.70) über. In der Plasmonpol-Approximation ist das Hauptband etwas weniger stark gedämpft. Dies liegt daran, daß die Dämpfungsfunktion $\Gamma_{jkk}(e_{jk})$, Glg. (6.62), in der Plasmonpolapproximation für $T=0\text{K}$ und für $k < k_F$ im Falle $\mu < \omega_p$ sehr klein ist und für $\Gamma_0 \rightarrow 0$ sogar verschwindet.

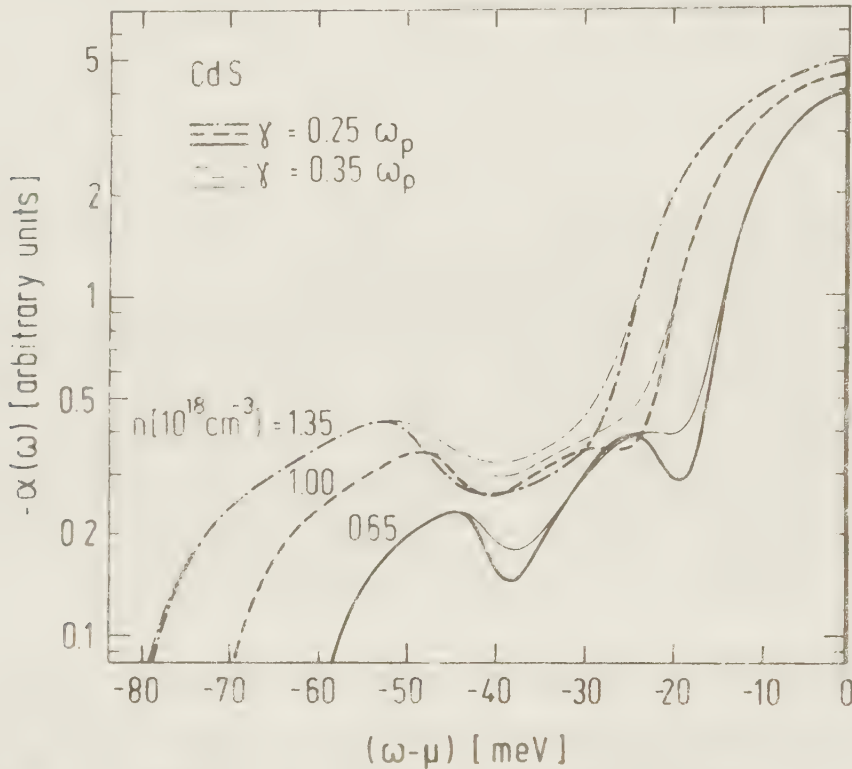
Insgesamt wurde eine ausreichende Übereinstimmung zwischen den RPA-Spektren und den Plasmonpol-Spektren gefunden. Es erschien deshalb gerechtfertigt, im folgenden den Anteil des Elektron-Loch-Plasmas in der gekoppelten Dynamik der Ladungsträger und der optischen Phononen in der Plasmonpol-Approximation zu behandeln.

ii) Plasmon-Phonon-Satelliten in den Spektren der optischen Verstärkung

Figur 8.3 zeigt Spektren der optischen Verstärkung, die unter Verwendung der Plasmon-Phonon-Pol-Approximation (6.58) berechnet wurden. In die dielektrische Funktion (6.58) wurde wie in Gleichung (6.29) nach dem Schema $(\omega + i\delta)^2 \rightarrow \omega(\omega + i\gamma)$ eine Dämpfungskonstante γ eingeführt. Durch die Berücksichtigung der Dynamik der longitudinal optischen Phononen entstehen nun anstelle des bisher einen Plasmonsatelliten zwei Seitenbänder im Absorptionsspektrum, die von der Emission der gekoppelten Plasmon-Phonon-Moden herrühren. Bei der Veränderung dieser Spektren in Abhängigkeit von der Plasmadichte spielen verschiedene Einflüsse eine Rolle. Die Energienenner in den Formeln (8.49) und (8.58) bewirken unterhalb der Bandkante ein Abklingen des Absorptionskoeffizienten. Eine wesentliche Rolle für die relative Stärke der Seitenbänder im optischen Spektrum spielt deshalb ihr Frequenzabstand zur renormierten Bandkante. Weiterhin hängt die Oszillatorstärke der $\omega_{\pm}$ -Seitenbänder von den Gewichtungsfaktoren $f_{\pm}$, Glg. (6.50), ab. Schließlich bestimmt die Dichteabhängigkeit der Frequenzen $\omega_{\pm}$ und des chemischen Potentials μ , bis zu welcher Plasmadichte ein Seitenband gemäß Gleichung (8.71) spektral aufgelöst werden kann, bevor es von dem Hauptband der direkten optischen Übergänge überlagert wird.

Bei der niedrigsten Plasmadichte in Figur 8.3, $n = 6.5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$, beträgt die Frequenz $\omega \approx 21.6 \text{meV}$, und das chemische Potential ist $\mu \approx 15.4 \text{meV}$. In diesem Fall treten beide Satellitenbänder in Erscheinung. Die ω_- -Mode und die ω_+ -Mode besitzen bei dieser Plasmadichte noch überwiegend Plasmon- bzw. Phononcharakter. Zwar ist das spektrale Gewicht f_+ der ω_+ -Mode wesentlich größer als das der ω_- -Mode (s. Figur 6.2b auf S. 106), aber aufgrund ihres großen Frequenzabstandes zum chemischen Potential μ

erscheint die ω_+ -Mode im optischen Spektrum schwächer. Dieses Spektrum zeigt, in welchem Sinne hier für niedrige Plasmadichten die unter i) verwendete einfache Plasmonpol-Näherung, d.h. die ϵ_0 -Approximation, verwendbar ist.



Figur 8.3. Spektren der optischen Verstärkung in CdS mit Plasmon-Phonon-Seitenbanden für verschiedene Ladungsträgerdichten.

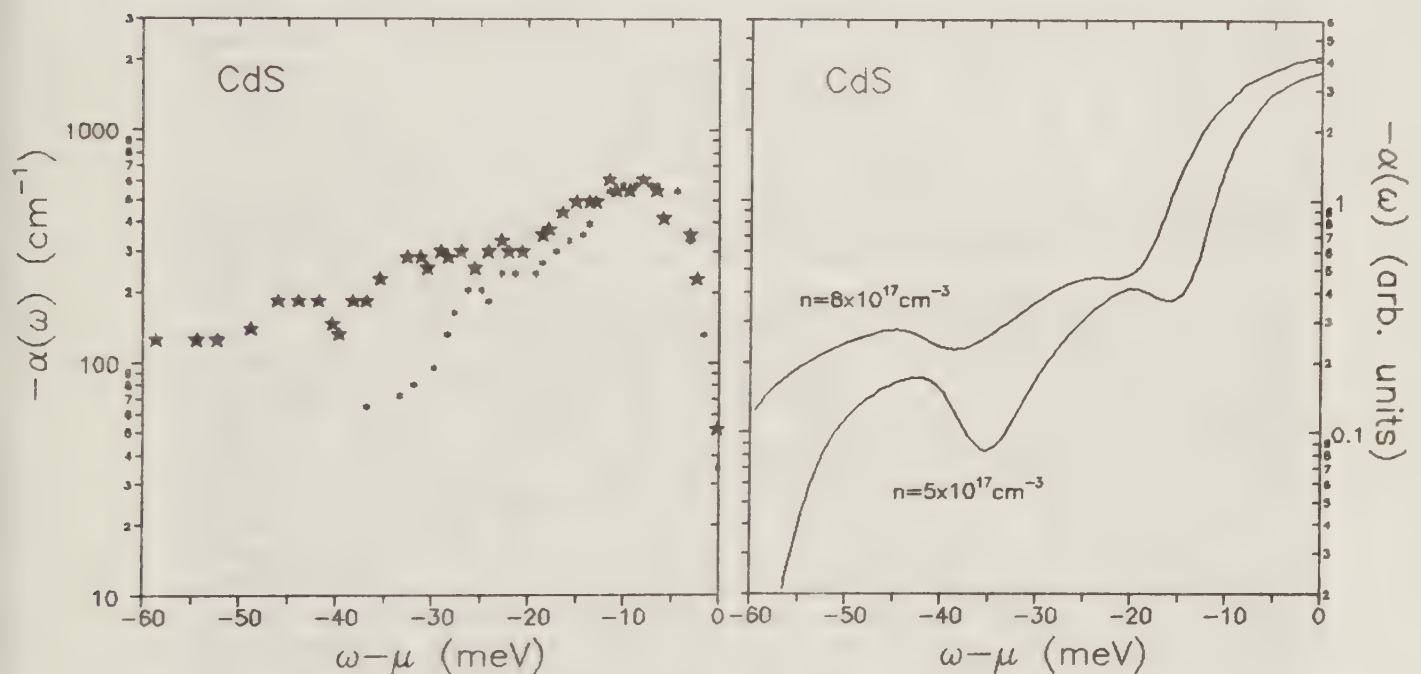
Bei der Plasmadichte $n=1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ beträgt die Frequenz $\omega_- \approx 24.4 \text{ meV}$ und das chemische Potential ist $\mu \approx 20.5 \text{ meV}$. Die Differenz $\omega_- - \mu$ hat sich nun bereits soweit verringert, daß das ω_- -Band teilweise mit dem Hauptband verschmolzen ist. Auch nimmt der Gewichtungsfaktor f_- bei dieser Dichte bereits wieder ab. Diese Kurve zeigt schön das stetige Aufgehen des Seitenbandes in der Resonanz der direkten Übergänge. Das Gewicht der ω_+ -Mode, die nun Plasmoncharakter anzunehmen beginnt, nimmt inzwischen zu.

Bei der Plasmadichte $n=1.35 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ schließlich ist nur noch die ω_+ -Mode zu sehen. In diesem Dichtebereich kann wieder eine einfache Plasmonpol-Approximation verwendet werden, da die optischen Phononen nun weitgehend durch das Elektron-Loch-Plasma abgeschirmt werden. In der $T=0\text{K}$ -Rechnung bleibt das ω_+ -Seitenband bis zu einer Ladungsträgerdichte von etwa $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ sichtbar, bevor es sich im Hauptband auflöst.

Figur 8.4 zeigt einen Vergleich unserer $T=0\text{K}$ -Spektren mit experimentellen Spektren, die von H. Saito an Cadmiumsulfid aufgenommen wurden [72]. Die Plasmadichte der theoretischen Kurven wurde so gewählt, daß die spektrale Position und das relative Gewicht der Seitenbanden denen des Experimentes entspricht. Entgegen den theoretischen Ergebnissen von R. Zimmermann [10, S. 136] scheinen meine Berechnungen zu bestätigen, daß es sich bei den experimentell beobachteten Strukturen um Plasmon-

Phonon-Seitenbanden des optischen Spektrums handelt. Auffällig ist allerdings der deutliche Unterschied zwischen Theorie und Experiment bezüglich des relativen Gewichtes der Satelliten im Vergleich zum Hauptband. In unserer Arbeit [74] vertraten wir die Ansicht, daß diese Diskrepanz hauptsächlich auf die Temperaturabhängigkeit der Spektren zurückzuführen sei. Wir argumentierten dabei folgendermaßen:

Im Frequenzbereich des Hauptbandes ist nach Gleichung (8.49) der Populationsfaktor $(1-f_{ek}-f_{h,-k})$ mit $k \approx k_0 = (2m(\omega - E_g'))^{1/2}$ relevant. Wegen ihrer relativ großen effektiven Masse sind in CdS die Löcher bereits bei geringen Temperaturen nicht mehr entartet. Deshalb nimmt die Besetzungszahl $f_{h,-k}$ mit $k=k_0$ mit zunehmender Temperatur rasch ab. Im Frequenzbereich der Seitenbanden dagegen ist der Besetzungszahlfaktor (8.44) relevant. Solange die thermische Energie $k_B T$ klein ist gegen die Frequenzen $\omega_{\pm}$, spielt zunächst auch bei endlichen Temperaturen die Absorption von Plasmon-Phonon-Quanten keine Rolle. Der Faktor (6.92) reduziert sich deshalb auch weiterhin im wesentlichen auf das Produkt $f_{ek} \cdot f_{h,-k}$. Da aber in Gleichung (8.49) und in Gleichung (8.58) über alle Impulse k und k' zu integrieren ist, sollte sich die Umverteilung der Löcher bei endlichen Temperaturen auf das spektrale Gewicht der Satellitenbänder weniger stark auswirken als auf das Hauptband.



Figur 8.4. Vergleich experimenteller Daten aus der Arbeit [72] mit berechneten Spektren der optischen Verstärkung in CdS. Die Dämpfungskonstanten sind $\gamma_{\pm} = 0.3\omega_p$.

Im folgenden Abschnitt werde ich die Temperaturabhängigkeit der Spektren diskutieren, die ich bei einer späteren Analyse fand. Die angeführte Argumentation findet sich dort zum Teil bestätigt. Es zeigt sich aber, daß die Temperaturabhängigkeit der Spektren allein die experimentell beobachtete relative Stärke der Satellitenbänder gegenüber dem

Hauptband nicht völlig erklären kann. Angeregt wurde ich zu dieser erneuten Untersuchung des Problems, als ich Gelegenheit zu einer Diskussion mit R. Zimmermann hatte [80]. Während meine Ergebnisse die Interpretation der experimentell beobachteten Strukturen als Plasmon-Phonon-Seitenbänder trotz der verbleibenden Diskrepanzen doch zu bestätigen scheinen, gelangte R. Zimmermann weder mit seinen früheren noch mit seinen neuesten theoretischen Untersuchungen zu diesem Schluß [77; 10, S. 136]. Auch zu den Unterschieden seiner und meiner theoretischen Behandlung des Problems werden deshalb im folgenden Abschnitt noch einige Bemerkungen gemacht.

8.9 Die Auswertung der Theorie für endliche Plasmatemperaturen

Im November des Jahres 1987 hatte ich Gelegenheit zu einer Diskussion mit R. Zimmermann [80]. Dabei ergaben sich für mich einige interessante Aspekte im Hinblick auf die Theorie der plasmon-phonon-assistierten optischen Übergänge. Ich erfuhr, daß R. Zimmermann inzwischen seine frühere Theorie der Spektren der optischen Verstärkung durch Elektron-Loch-Plasmen [77] neu überarbeitet hatte. Auch er hatte inzwischen bemerkt, daß sich durch die Berücksichtigung der Stoßverbreiterung der Ladungsträger die Divergenz, die für $\omega \rightarrow E'_g$ im störungstheoretischen Spektrum, Glg. (8.53), auftritt, beseitigen läßt, und daß sich auf diese Weise ein stetiger Übergang von den Satellitenbändern in das Hauptband ergibt. Ferner zeigt er in seiner inzwischen erschienenen neuen Arbeit [10], daß sich, entgegen der Behandlung in seinen früheren Publikationen, die exzitonische Verstärkung des optischen Spektrums sowohl auf die direkten als auch auf die indirekten optischen Übergänge erstreckt [10, Glg. (5.90) ff.]. Dieses Ergebnis unterstützt meine eigene Vorgehensweise ganz wesentlich.

Trotz dieser Übereinstimmung in unseren Auffassungen konnte Zimmermann seine elegante Theorie, die sowohl die dynamischen Korrelationseffekte als auch die exzitonische Verstärkung berücksichtigt, nicht in Einklang bringen mit der experimentellen Beobachtung von Plasmonsatelliten in den optischen Spektren. Leider waren ihm zum Zeitpunkt unserer Diskussion noch nicht die Spektren bekannt, die H. Saito 1981 veröffentlicht hatte (s. Figur 8.4) [72], sondern lediglich die 1985 von H. Saito und E. Göbel publizierten Messungen [73], die in der Tat weniger deutliche Strukturen im Spektrum zeigen. Nach Zimmermanns damaliger Ansicht konnte es sich bei diesen Strukturen nicht um Plasmonsatelliten handeln, da deren Oszillatorstärke nach seinen Berechnungen wesentlich geringer sein sollte. Die 1981 publizierten experimentellen Spektren zeigen aber nach meiner Ansicht eindeutig Plasmon-Phonon-Satelliten.

Um Zimmermanns Aussage nachzugehen, daß die theoretischen Seitenbänder schwächer sind als die experimentell beobachteten Strukturen, und um eventuelle gravierende Unterschiede zwischen unseren theoretischen Beschreibungen festzustellen, nahm ich 1988, nach Abschluß meiner Berechnungen zum exzitonischen optischen Stark-Effekt (s. Kapitel 9), nochmals die Analyse der Plasmaspektren auf.

Um zu eindeutigen Aussagen zu gelangen, war es nun unumgänglich, die Temperaturabhängigkeit der optischen Spektren zu berücksichtigen. Hierzu nahm ich die Vereinfachung vor, die q-Dispersion der Plasmon-Phonon-Moden zu vernachlässigen,

$$\omega_{\pm q} \rightarrow \omega_{\pm} = \omega_{\pm, q=0}. \quad (8.73)$$

Der hierdurch entstehende Fehler ist relativ klein. Mit der Ersetzung (8.73) ergibt sich aber die bedeutende Vereinfachung, daß in den Gleichungen (8.58) und (6.60) die Integration über den Winkel θ zwischen den Vektoren $\mathbf{k}$ und $\mathbf{k}'$ analytisch ausführbar wird. Dabei entsteht das winkelmittelte Coulombpotential

$$\begin{aligned} I_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} &= \frac{1}{2} \int_{-1}^{+1} d(\cos\theta) V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \\ &= V_{\mathbf{k}} h(k/k') \end{aligned} \quad (8.74)$$

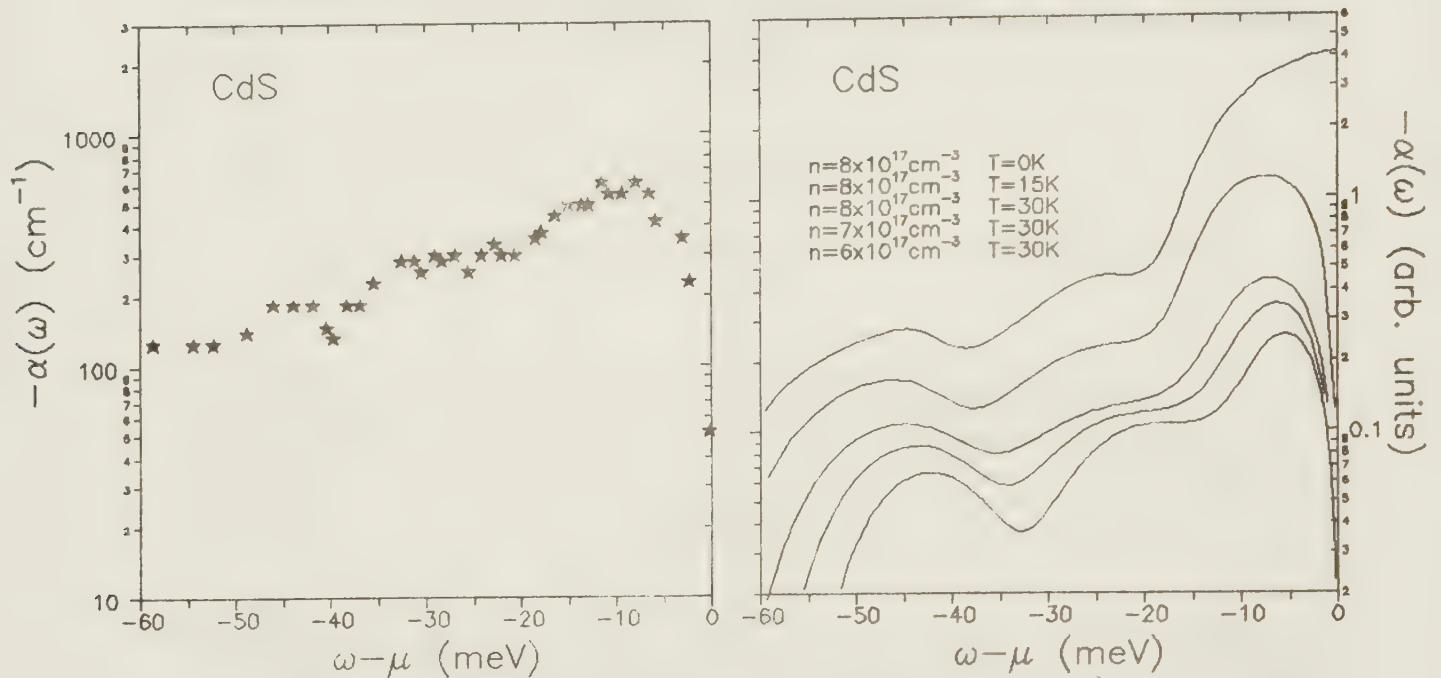
mit

$$h(x) = \frac{x}{2} \ln \left| \frac{1+x}{1-x} \right|. \quad (8.75)$$

Um numerisch über die logarithmische Divergenz der Funktion $h(x)$, Glg. (8.75), an der Stelle $x=1$ integrieren zu können, ging ich nach dem Kompensationschema vor, das in der Arbeit [12, §4.3.3] angegeben ist.

Figur 8.5a zeigt eine Serie von Spektren der optischen Verstärkung, die nach den Formeln (8.49) und (8.58) für endliche Plasmatemperaturen berechnet wurden. Mein Ziel war hier, durch sukzessives Erhöhen des Parameters Temperatur das Verhältnis der Oszillatorstärken von Hauptband und Seitenbändern dem experimentell beobachteten Verhältnis in Figur 8.5b anzupassen (auf den Absolutwert des Absorptionskoeffizienten kam es dabei nicht an, da ein globaler Faktor in einer logarithmischen Darstellung lediglich zu einer vertikalen Verschiebung der Kurve führt). Die Erhöhung der Temperatur von $T=0\text{K}$ auf $T=30\text{K}$ zeigt bereits, daß dies bei gleichbleibender Plasmadichte nicht möglich ist. Zwar wirkt sich, wie erwartet, die Erhöhung der Temperatur am stärksten auf das Hauptband aus. Auf der logarithmischen Skala jedoch wird auch das Gewicht der Seitenbänder merklich reduziert. Besonders das ω_- -Band verliert rasch an Struktur. In dieser Hinsicht hatte ich den Einfluß der Temperatur früher unterschätzt. Um das richtige Verhältnis der Gewichte der Seitenbänder wiederherzustellen, ist es nun notwendig, die Plasmadichte zu reduzieren. Fährt man in dieser Weise fort, so gelangt man zwar schließlich, wie die Kurve zu $n=6 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ und $T=30\text{K}$ zeigt, zu einem Spektrum, in dem das Verhältnis der Oszillatorstärken von Hauptband und Seitenbändern etwa dem experimentell beobachteten Verhältnis entspricht, inzwischen ist jedoch durch die Erhöhung der Temperatur und durch die Verringerung der Plasmadichte das chemische Potential eindeutig zu klein geworden. Offenbar ist es mit meiner Theorie nicht möglich, vollständige Übereinstimmung mit dem experimentell beobachteten Spektrum zu erreichen. Wie Zimmermann erhalte ich

Seitenbanden, deren spektrales Gewicht im Vergleich zu den experimentellen Strukturen zu gering ist. Nach Zimmermanns Berechnungen allerdings sind die Plasmon-Phonon-Satelliten noch um etwa eine weitere Größenordnung schwächer als in meinen Ergebnissen [10, S. 136].



Figur 8.5. Vergleich experimenteller Daten aus der Arbeit [72] mit berechneten Spektren der optischen Verstärkung in CdS für endliche Plasmatemperaturen. Die Dämpfungskonstanten sind $\gamma_{\pm} = 0.3\omega_p$.

Zimmermann gelangt im Rahmen der Shindo-Approximation zu einer Formel für die Plasmaspektren, die große Ähnlichkeit zu meinem Ergebnis (8.49) und (8.58) besitzt [10, Glg. (5.86)]. Allerdings berücksichtigt seine Theorie neben den dynamischen Korrelationseffekten auch die exzitonische Verstärkung. Deshalb ist in seinem Ergebnis das nackte optische Matrixelement μ_k durch ein exzitonisch verstärktes, frequenzabhängiges Matrixelement ersetzt. In Abschnitt 7.6 wurde gezeigt, daß die Coulombverstärkung ihr Maximum im Hauptband in der Nähe des chemischen Potentials annimmt. Dies liefert einen Grund dafür, weshalb in Zimmermanns Theorie die Seitenbänder schwächer erscheinen. Als Hauptursache für die Diskrepanz zwischen unseren Ergebnissen fand ich jedoch, daß in Zimmermanns Resultat eine stärkere Kompensation zwischen Selbstenergiekorrekturen und Vertexkorrektur eintritt. In seiner Formel ergänzen sich, wie in der störungstheoretischen Formel (8.53), Selbstenergiekorrekturen und Vertexkorrektur zu einem vollständigen Quadrat,

$$\left| \frac{\mu_{\mathbf{k}}}{\omega - e_{\mathbf{ek}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}} - \frac{\mu_{\mathbf{k}'}}{\omega - e_{\mathbf{ek}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'}} \right|^2 \quad (8.76)$$

$$\rightarrow \left| \frac{\mu_{\mathbf{k}}}{\omega - e_{\mathbf{ek}} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}} + i\Gamma_{\text{eff},\mathbf{k}}(\omega)} - \frac{\mu_{\mathbf{k}'}}{\omega - e_{\mathbf{ek}'} - e_{\mathbf{h},-\mathbf{k}'} + i\Gamma_{\text{eff},\mathbf{k}'}(\omega)} \right|^2$$

und insbesondere tritt für $\mathbf{k}=\mathbf{k}'$ exakte Kompensation ein. In dem Ausdruck (8.76) ist Γ_{eff} eine effektive Dämpfungskonstante,

$$\Gamma_{\text{eff},\mathbf{k}}(\omega) = \frac{[1 - f_{\mathbf{ek}} - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}(\omega - e_{\mathbf{ek}})] \Gamma_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}(\omega - e_{\mathbf{ek}})}{1 - f_{\mathbf{ek}} - f_{\mathbf{h},-\mathbf{k}}} + (e \longleftrightarrow h). \quad (8.77)$$

Das Auftreten des Besetzungszahlfaktors im Nenner dieses Ausdrucks wird von Zimmermann selbst als ein Artefakt der Shindo-Approximation empfunden [70, §3]. Das Auftreten des Absolutquadrates (8.76) wirkt aber sehr systematisch.

Während meiner Herleitung der Ausdrücke (8.49) und (8.58) sah ich keinen Hinweis darauf, daß auch nichtstörungstheoretisch die Ergänzung von Selbstenergiekorrekturen und Vertexkorrektur zu einem vollständigen Quadrat zu fordern sei. Ebenso sah ich keinen zwingenden physikalischen Grund, weshalb sich die Beiträge mit $\mathbf{q}=\mathbf{k}-\mathbf{k}'=0$ immer gerade kompensieren müssen. In den Streuprozessen (8.45) bedeutet $\mathbf{k}=\mathbf{k}'$ lediglich, daß der virtuelle Zwischenzustand identisch mit dem Ausgangszustand ist (die $1/q^2$ -Divergenz ist integrierbar). Durch meine späteren Erfahrungen beim Umgang mit der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger, insbesondere durch meine störungstheoretischen Rechnungen zum exzitonischen optischen Stark-Effekt, s. Kapitel 9 und 10, kam ich aber zu der Ansicht, daß die von Zimmermann verwendete Form (8.76) vermutlich korrekter ist. Um so erstaunlicher ist aber, falls dies zutrifft, die Diskrepanz zwischen Zimmermanns Theorie und den experimentellen Resultaten.

Ein Teil der Unterschiede zwischen Theorie und Experiment rührt möglicherweise von der starken Anisotropie des Lochbandes in Cadmiumsulfid her (s. Glg. (8.64)). Diese Anisotropie hat zur Folge, daß das Band der direkten optischen Übergänge für tiefe Plasmatemperaturen etwas schwächer ist als es das isotrope Modell vorhersagt [10, §3.4]. Ob die Anisotropie des Systems allerdings ausreicht, um die beträchtlichen auftretenden Unstimmigkeiten zu klären, ist zweifelhaft. Vielmehr scheint es, als sei das Zusammenwirken der dynamischen Korrelationseffekte wie Abschirmung und inelastische Streuung einerseits und der exzitonischen Korrelation im Elektron-Loch-Plasma andererseits noch nicht ausreichend verstanden. Sehr hilfreich zur Klärung der auftretenden Probleme wäre deshalb die vollständige Lösung der Integralgleichungen (8.9) und (8.19) der optischen Polarisation.

9. DER EXZITONISCHE OPTISCHE STARK-EFFEKT

In diesem Teil meiner Arbeit werde ich die nichtlinearen optischen Effekte diskutieren, die sich unter kohärenter Anregung eines Halbleiters in seinem Transparenzgebiet einstellen.

Liegt die Frequenz des anregenden Laserstrahls unterhalb des Exzitonspektrums, so wird der Halbleiter durch das kohärente Lichtfeld in einen optisch polarisierten Zustand versetzt, ohne daß dabei reelle Absorption von Lichtquanten stattfindet. In diesem Fall werden Ladungsträger nicht dauerhaft erzeugt, sondern bleiben nach der Heisenbergschen Unschärferelation nur für eine Zeit bestehen, die umgekehrt proportional zur Verstimmung zwischen der Laserfrequenz und dem Exzitonspektrum ist. Diese mit der optischen Polarisation verbundene virtuelle Besetzung angeregter Einteilchenzustände verschwindet mit dem Abklingen des Laserfeldes wieder. Typisch für die Theorie virtueller Elektron-Loch-Paare ist deshalb die explizite Abhängigkeit der optisch induzierten Ladungsträgerdichte von der Intensität des anregenden Laserstrahls. Die Bezeichnung 'virtuell' wurde auch deshalb gewählt, um auf die Analogie aufmerksam zu machen, die zwischen der vorübergehenden Besetzung eines Zustandes während einer optischen Polarisationsschwingung und der virtuellen Besetzung eines Quantenzustandes in einem mehrstufigen Prozess, wie ihn beispielsweise das Diagramm (8.45) darstellt, besteht. Die Physik der optischen Nichtlinearitäten infolge virtueller Elektron-Loch-Paare wird meist unter der Bezeichnung 'exzitonischer optischer Stark-Effekt' zusammengefaßt. Dieser Effekt, der erstmals 1986 gemessen wurde [24, 25, 26], hat unter Halbleiterphysikern einiges Aufsehen hervorgerufen. In experimenteller und in technischer Hinsicht ist der dynamische Stark-Effekt an Exzitonen interessant, da er eine Möglichkeit liefert, elektro-optische Schaltelemente mit extrem kurzen Ansprechzeiten zu konstruieren. Aber auch in theoretischer Hinsicht stellt der exzitonische optische Stark-Effekt ein interessantes Problem dar, zum einen, da es sich um eine der ersten Messungen eines kohärenten optischen Effektes im Halbleiter überhaupt handelt, und zum anderen, weil hier erstmals eine deutliche optisch induzierte Verschiebung der Exzitonresonanz nachgewiesen wurde.

Der exzitonische optische Stark-Effekt umfaßt eine Reihe theoretischer Probleme, die in dieser Arbeit, um einen klaren Eindruck zu ermöglichen, getrennt voneinander untersucht werden sollen. Zunächst wird im folgenden Abschnitt der reine, stationäre optische Stark-Effekt am Beispiel eines einfachen Zweiniveau-Modells diskutiert. Anschließend wird diese Theorie zur Untersuchung des Einflusses von Vielteilcheneffekten auf das Zweiband-Modell eines Halbleiters ausgedehnt. Es wird sich zeigen, daß die Vielteilcheneffekte im Halbleiter den optischen Stark-Effekt entscheidend beeinflussen. Nach der Diskussion des quasistationären optischen Stark-Effektes werden die Effekte behandelt, die von der Zeitabhängigkeit der Laserintensität herrühren. Schließlich wird in Kapitel 10 eine Theorie der Korrelationseffekte formuliert, die in einem System kohärent getriebener Elektron-Loch-Paare auftreten.

9.1 Der atomare optische Stark-Effekt

Dieser Abschnitt soll als Vorbereitung zur Theorie des exzitonischen optischen Stark-Effektes dienen. Um die lichtinduzierten Effekte zu erläutern, wird zunächst ein einfaches System ohne Vielteilcheneffekte untersucht. Als Modell kommt hierfür der Zweiband-Halbleiter unter Vernachlässigung der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger in Frage. Dieses Modell besitzt allerdings keine reale Bedeutung. Demgegenüber ist das Zweiniveau-Atom als Modell für den atomaren optischen Stark-Effekt nicht unrealistisch [81]. Der exzitonische optische Stark-Effekt ist vom optischen Stark-Effekt in beiden Modellsystemen sehr verschieden.

9.1.1 Die kohärente Dynamik des optisch angeregten Systems

Es soll ein Zweiniveau-System mit den Energieniveaus $\epsilon_1 > \epsilon_2$ betrachtet werden, das sich im Feld eines kohärenten Laserstrahls befindet. Der Hamiltonoperator dieses Systems ist in Vereinfachung der Operatoren (1.17) und (2.62) gegeben durch

$$H = \sum_j \epsilon_j a_j^\dagger a_j - [a_1^\dagger a_2 \mu E_p(t) + a_2^\dagger a_1 \mu^* E_p^*(t)], \quad (9.1)$$

wobei $E_p(t) = E_p' \exp(-i\omega_p t)$ das nichtresonante monochromatische Pumpfeld ist. Für die Gleichung der optischen Polarisation $p = \langle a_2^\dagger a_1 \rangle$ des Zweiniveau-Atoms läßt sich die erste Zeile von Gleichung (3.6) übernehmen:

$$i\dot{p} = \epsilon p - (1 - 2n) \mu E_p(t), \quad (9.2)$$

mit den Abkürzungen

$$\epsilon = \epsilon_1 - \epsilon_2, \quad (9.3)$$

$$n = n_1 = \langle a_1^\dagger a_1 \rangle = 1 - n_2. \quad (9.4)$$

Gleichung (9.4) bringt zum Ausdruck, daß das Modellatom genau ein Elektron besitzt. Für die Besetzungszahl n erhält man mit Hilfe der Heisenberg-Gleichung (3.5) die Bewegungsgleichung

$$\dot{n} = i[\mu E_p(t) p^* - \mu^* E_p^*(t) p]. \quad (9.5)$$

Mit den Gleichungen (9.2) und (9.5) erhält man die Beziehung

$$\frac{d}{dt} [(1 - 2n)^2 + 4|p|^2] = 0. \quad (9.6)$$

Hieraus folgt, daß es sich bei dem Ausdruck

$$K = (1 - 2n)^2 + 4|p|^2 \quad (9.7)$$

um eine Erhaltungsgröße handelt. Die Konstante K in Gleichung (9.7) kann mit Hilfe der Randbedingung festgelegt werden, daß sich das System vor dem Einsetzen des Laserstrahls im Grundzustand befunden haben möge. Dann folgt aus Gleichung (9.7)

$$K = 1, \quad (9.8)$$

$$n = \frac{1}{2} (1 \mp \sqrt{1 - 4|p|^2}). \quad (9.9)$$

Gleichung (9.9) setzt die Besetzungszahl n und die optische Polarisation p in eine feste Beziehung zueinander. Hierdurch kommt gerade zum Ausdruck, daß es sich bei der Besetzung n des angeregten Zustandes $|1\rangle$ um eine rein virtuelle Anregung handelt.

9.1.2 Inkohärente Prozesse: die Berücksichtigung von Relaxationskonstanten

Der Erhaltungssatz (9.7) und die Beziehung (9.9) verlieren ihre Gültigkeit, wenn man in die Bewegungsgleichungen (9.2) und (9.5) Dämpfungskonstanten einführt. Die Berücksichtigung von Relaxationsprozessen führt auf die bekannten Maxwell-Bloch-

Gleichungen

$$i\dot{p} = (\epsilon - i\gamma_T) p - (1 - 2n) \mu E_p(t), \quad (9.10)$$

$$\dot{n} = -\gamma_L n + i[\mu E_p(t) p^* - \mu^* E_p^*(t) p]. \quad (9.11)$$

In den Gleichungen (9.10) und (9.11) sind γ_L und γ_T die sogenannte longitudinale und die sogenannte transversale Relaxationskonstante. Die longitudinale Relaxationskonstante γ_L gibt die inverse mittlere Lebensdauer des angeregten Zustandes $|1\rangle$ an. In diese Größe geht die Rekombinationsrate aufgrund spontaner Emission von Photonen und aufgrund anderer, nichtstrahlender Übergänge ein. Solche Prozesse bewirken auch eine Verminderung der Kohärenz von optischen Polarisationschwingungen. Deshalb liefert die Rekombinationsrate auch einen Beitrag zur Dämpfungskonstante γ_T der optischen Polarisierung. Sind die Rekombinationsprozesse die einzigen inkohärenten Prozesse, die betrachtet werden, so gilt [13, Glg. (VI.11.7)]

$$\gamma_T = \gamma_L/2. \quad (9.12)$$

In realen Systemen finden aber in der Regel viele Prozesse statt, die die Besetzungszahlen n nicht ändern, die aber die Kohärenz optischer Polarisationschwingungen vermindern. In einem Gas beispielsweise kann dies durch die Stöße der Atome untereinander geschehen. Deshalb gilt anstelle von Gleichung (9.12) meist die Relation

$$\gamma_T \gg \gamma_L. \quad (9.13)$$

Auf einer Zeitskala, die viel kürzer ist als die Rekombinationszeit γ_L^{-1} , kann es dann sinnvoll sein, lediglich die Dämpfungskonstante γ_T zu berücksichtigen [82].

9.1.3 Die adiabatische Elimination der Polarisierung: reelle optische Übergänge nach 'Fermis goldener Regel'

Da die transversale Relaxationskonstante γ_T häufig verhältnismäßig groß ist, sind in vielen Fällen die in Abschnitt 7.1 diskutierten Voraussetzungen für die adiabatische Elimination der optischen Polarisierung gegeben. Diese Näherung liefert im vorliegenden Fall für die optische Polarisierung den Ausdruck

$$p(t) \simeq \frac{(1 - 2n(t)) \mu E_p(t)}{\epsilon - \omega_p - i\gamma_T}, \quad (9.14)$$

(vgl. Glg. (7.7)), wobei ω_p die Frequenz des anregenden Laserstrahls ist. Setzt man die Näherung (9.14) in Gleichung (9.11) ein, so resultiert für die zeitliche Änderung der Besetzungszahl n die Gleichung

$$\dot{n} = -\gamma_L n + \frac{2\gamma_T}{(\epsilon - \omega_p)^2 + \gamma_T^2} (1 - 2n) |\mu E_p(t)|^2. \quad (9.15)$$

Der zweite Term auf der rechten Seite von Gleichung (9.15) ist die Rate $2\text{Im}\chi_p(\omega_p)|E_p|^2$ der laserinduzierten Übergänge. Dieser Ausdruck ergibt sich auch aus 'Fermis goldener Regel', nach der die Übergangsrate von Fermionen von einem Quantenzustand $|i\rangle$ in einen Quantenzustand $|j\rangle$ unter dem Einfluß einer periodischen Störung V der Frequenz ω gegeben ist durch

$$W_{i \rightarrow j} = 2\pi n_i (1 - n_j) |(i|V|j)|^2 \delta(\epsilon_j - \epsilon_i - \omega). \quad (9.16)$$

Im vorliegenden Fall ist $|(i|V|j)|^2 = |\mu E_p|^2$ und $\omega = \pm\omega_p$. Aus Gleichung (9.16) erhält man für die Netto-Übergangsrate im Zweiniveau-Atom

$$W_{2 \rightarrow 1} - W_{1 \rightarrow 2} = 2\pi (1 - 2n) |(i|V|j)|^2 \delta(\epsilon - \omega_p). \quad (9.17)$$

Das ist gerade der Ausdruck, der in Gleichung (9.15) eingeht, sofern man noch in die δ -Funktion in Gleichung (9.17), die die Energieerhaltung zum Ausdruck bringt, gemäß

$$\delta(\epsilon - \omega_p) \rightarrow \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_T}{(\epsilon - \omega_p)^2 + \gamma_T^2} \quad (9.18)$$

eine Verbreiterung einführt. Die Energieerhaltung $\omega_p \simeq \epsilon$, die in der Näherung (9.15) bei optischen Übergängen erfüllt sein muß, zeigt, daß man durch Einsetzen der adiabatischen Näherung (9.14) in Gleichung (9.11) gerade nur die reellen optischen Übergänge erfaßt. Die Lorentz-Linie (9.18) ist etwas unrealistisch, da sie in ihren Ausläufern nur vergleichsweise langsam wie $(\epsilon - \omega_p)^{-2}$ abfällt. Reale Absorptionslinien fallen rascher ab und erstrecken sich nicht beliebig weit. Für die Exzitonresonanz beispielsweise gilt die Martienssen-Urbach-Regel [21], nach der der niederenergetische Ausläufer der Exzitonlinie exponentiell abfällt. Um ein solches Verhalten zu beschreiben, muß man eine frequenzabhängige Dämpfungskonstante $\gamma_T(\omega)$ berechnen. Stellt man sich also anstelle der Lorentzlinie (9.18) eine Absorptionslinie vor, die im wesentlichen nur in einem

begrenzten Frequenzintervall von Null verschieden ist, so findet nach Gleichung (9.15) im Transparenzgebiet, d.h. für Laserfrequenzen, die außerhalb der Absorptionslinie liegen, gar keine optisch induzierte Veränderung der Besetzungszahl n statt. Das ist aber, wie sich zeigen wird, unzutreffend.

9.1.4 Virtuelle Anregungen

Ist die Laserfrequenz ω_p sehr verschieden von der Übergangsfrequenz ϵ des Zweiniveau-Atoms, so reicht nur ein geringer Teil des Frequenzspektrums des Laserpulses in den Bereich der Absorptionslinie, und es ist deshalb gerechtfertigt, die ungedämpfte Form (9.2) der Bewegungsgleichung der optischen Polarisation zu verwenden. Ist ferner die Pulsdauer des Lasers kürzer als die Lebensdauer γ_L^{-1} der atomaren Anregungen, so kann auch Gleichung (9.5) verwendet werden. In diesem Fall gilt also der Erhaltungssatz (9.7) und die Beziehung (9.9).

Für den Augenblick soll vereinfachend von einem Laserstrahl geringer Intensität ausgegangen werden. Dann läßt sich annehmen, daß in Gleichung (9.2) die Besetzungszahl n vernachlässigbar ist,

$$2n \ll 1. \quad (9.19)$$

Die resultierende lineare Gleichung läßt sich durch Fouriertransformation lösen, und man erhält

$$p(t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} \frac{\mu E_p(\omega) e^{-i\omega t}}{\epsilon - \omega}. \quad (9.20)$$

Führt man wieder, wie in den Gleichungen (7.1) und (7.3), Amplituden E'_p und p' des Laserfeldes und der Polarisation ein, so gelangt man mit Gleichung (9.20) zu

$$p'(t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} \frac{\mu E_p'(\omega) e^{-i\omega t}}{\epsilon - \omega_p - \omega}. \quad (9.21)$$

Da ω_p die Zentralfrequenz des Laserfeldes ist, liegt das Maximum der Funktion $E_p'(\omega)$ in der Nähe des Ursprungs $\omega=0$. Ist $\Delta\omega$ die spektrale Breite des Laserpulses, so stammen folglich die Hauptbeiträge zu dem Integral (9.21) aus dem Frequenzbereich $-\Delta\omega < \omega < +\Delta\omega$. Ist nun die Verstimmung $\epsilon - \omega_p$ des Lasers zur atomaren Resonanzfrequenz groß gegen die spektrale Breite $\Delta\omega$ des Lasers,

$$|\epsilon - \omega_p| \gg \Delta\omega, \quad (9.22)$$

so läßt sich im Nenner des Integrals (9.21) näherungsweise die Frequenz ω vernachlässigen. Dies führt zu der Beziehung

$$p(t) \simeq \frac{\mu E_p(t)}{\epsilon - \omega_p}. \quad (9.23)$$

Durch diese Näherung ist die optische Polarisation also wiederum auf der Form (9.14). Im Rahmen der adiabatischen Näherung (9.10)–(9.14) wurde die Zeitableitung $\dot{p}'$ der Polarisation gegenüber dem Dämpfungsterm $-\gamma_T p'$ vernachlässigt. An den Gleichungen (9.21–23) erkennt man nun, daß die Zeitableitung der Polarisation gegebenenfalls auch gegen den Verstimmungsterm $(\epsilon - \omega_p)p'$ vernachlässigbar ist. Beide Möglichkeiten lassen sich zusammenfassen zu der Bedingung

$$|\epsilon - \omega_p - i\gamma_T| \gg \Delta\omega \quad (9.24)$$

für die Anwendbarkeit der adiabatischen Näherung. Diese Argumentation läßt vermuten, daß für große Verstimmung und nicht zu große Laserintensitäten in Verallgemeinerung von Gleichung (9.23) auch

$$p(t) \simeq \frac{(1 - 2n(t)) \mu E_p(t)}{\epsilon - \omega_p} \quad (9.25)$$

gelten sollte. Dies findet man tatsächlich bestätigt [83]. Allerdings kann die Näherung (9.25) nicht in der Bewegungsgleichung (9.5) der Besetzungszahl n verwendet werden, denn mit Gleichung (9.25) folgt nach Gleichung (9.5) $\dot{n}=0$. Stattdessen läßt sich die adiabatische Näherung (9.25) aber in den Erhaltungssatz (9.7) einsetzen, und man erhält

$$n(t) = \frac{1}{2} \left[1 \begin{matrix} (-) \\ (+) \end{matrix} \frac{|\epsilon - \omega_p|}{\sqrt{(\epsilon - \omega_p)^2 + 4|\mu E_p(t)|^2}} \right]. \quad (9.26)$$

Die Gleichungen (9.25) und (9.26) beschreiben diejenigen Situationen, in denen die optische Polarisation p und die Besetzungszahl n keine nennenswerte Eigendynamik entwickeln, sondern im wesentlichen der Dynamik des externen Laserfeldes folgen. Abweichungen von diesem Verhalten treten auf, wenn das Laserfeld sehr plötzlich eingeschaltet wird. Das Atom beginnt dann unter dem Einfluß des Feldes, sogenannte Rabi-Oszillationen auszuführen [84]. Während dieser Eigenoszillationen wird durchaus auch das "+"-Zeichen in Gleichung (9.9) realisiert. In denjenigen Fällen jedoch, in denen das atomare System dem externen Laserfeld adiabatisch folgt, kommt nur das "-"-Zeichen in Gleichung (9.9) vor, und entsprechend ist in Gleichung (9.26) das "-"-Zeichen zu wählen.

Wie Gleichung (9.26) verdeutlicht, verschwinden rein virtuelle Anregungen mit dem Abklingen des Laserfeldes, und das System kehrt in seinen Grundzustand zurück. Hieraus resultieren die enorm kurzen Ansprechzeiten der optischen Nichtlinearitäten, die sich infolge virtueller Anregungen einstellen. Reicht dagegen ein nennenswerter Anteil des Frequenzspektrums des Lasers in die Absorptionslinie hinein, so werden neben virtuellen auch reelle Anregungen erzeugt. In diesem Fall bleiben nach dem Abklingen des Laserstrahls angeregte Atome zurück, die erst gemäß der Lebensdauer γ_L der angeregten Zustände in ihren Grundzustand zurückkehren.

Mit den Gleichungen (9.25) und (9.26) sind die optische Polarisation p und die Besetzungszahl n auf der Form der stationären Lösungen der Bewegungsgleichungen (9.2) und (9.5), und sie hängen nur noch parametrisch über die Laserintensität von der Zeit ab. Während man im Zweiniveau-Modell natürlich auch die exakte Zeitabhängigkeit der Größen p und n behandeln kann, erweist sich dieses Ergebnis für die Vielteilchentheorie des exzitonischen optischen Stark-Effektes als sehr hilfreich.

9.1.5 Der quasistationäre atomare optische Stark-Effekt

Um die Veränderung des Systems unter dem Einfluß des nichtresonanten, kohärenten Laserfeldes zu untersuchen, mißt man seine Reaktion auf einen zusätzlich eingeschalteten Teststrahl. Bei der Berechnung der optischen Suszeptibilität des Teststrahles spielt die Zeitabhängigkeit der optischen Polarisation $p(t)$ und der Besetzungszahl $n(t)$, Glg. (9.25) und (9.26), eine wichtige Rolle (s. Abschnitt 9.3). In einem ersten Schritt soll der reine optische Stark-Effekt besprochen werden, der vorliegt, wenn sich das Atom in einem langsam veränderlichen anregenden Laserfeld befindet. Als langsam veränderlich kann der anregende Laserpuls, wie sich in Abschnitt 9.3 zeigen wird, in diesem Zusammenhang gelten, falls seine Pulsdauer τ groß ist im Vergleich zur Relaxationszeit γ_T^{-1} der optischen Polarisation. In diesem Fall kann die Feldstärke $E_p(t)$ des Pumpstrahles als zeitunabhängig betrachtet werden, und die Beziehungen (9.25) und (9.26) gelten dann exakt.

Das stationäre, kohärent getriebene System werde nun der Wirkung eines zusätzlichen schwachen Teststrahles ausgesetzt. Zur Berechnung der linearen Reaktion des stationären Systems auf den Teststrahl genügt es, eine einzige Fourierkomponente des Testfeldes bzw. ein monochromatisches Testfeld zu verwenden:

$$E_p(t) \rightarrow E_p(t) + E_t(t),$$

$$E_t(t) = E'_t e^{-i\omega_t t}. \quad (9.28)$$

Das Feld E_t hat Auslenkungen δp und δn der Polarisation p und der Besetzungszahl n aus ihren Gleichgewichtslagen (9.25) und (9.26) zur Folge. Die Linearisierungen der Gleichungen (9.2) und (9.9) in Bezug auf diese Auslenkungen und in Bezug auf das Testfeld lauten

$$i\delta p' = (\epsilon - \omega_p) \delta p' - (1 - 2n) \mu E'_t e^{-i\Delta t} + 2\mu E'_p \delta n, \quad (9.29)$$

$$\delta n = \frac{p'^* \delta p' + p' \delta p'^*}{1 - 2n} \quad (9.30)$$

mit $\Delta = \omega_t - \omega_p$. Durch Einsetzen von Gleichung (9.30) in Gleichung (9.29) sieht man, daß die Größe $\delta p'$ an ihr konjugiert Komplexes ankoppelt. Zur Lösung ist deshalb ein Ansatz

$$\delta p' = \delta p'_+ e^{-i\Delta t} + \delta p'_- e^{+i\Delta t} \quad (9.31)$$

notwendig. Nach Gleichung (9.31) besitzt die Polarisation δp neben dem Anteil $\propto \delta p'_+$, der die Oszillation mit der treibenden Frequenz $\omega_t = \omega_p + \Delta$ angibt, auch einen Anteil $\propto \delta p'_-$ bei der Frequenz $\omega_p - \Delta = 2\omega_p - \omega_t$. Die optische Suszeptibilität ist durch die Reaktion des Systems bei der Testfrequenz ω_t , also durch den ersten Term in Gleichung (9.31) gegeben:

$$\chi_t(\omega_t) = \frac{\mu^* \delta p'_+}{E'_t}. \quad (9.32)$$

Durch Einsetzen des Ansatzes (9.31) in Gleichung (9.29) erhält man die beiden Gleichungen

$$0 = (\epsilon - \omega_p - \Delta - i\delta) \delta p'_+ - (1 - 2n) \mu E'_t \quad (9.33)$$

$$+ \frac{2\mu E_p' p'^*}{1 - 2n} \delta p'_+ + \frac{2\mu E_p' p'}{1 - 2n} \delta p'_-,$$

$$0 = (\epsilon - \omega_p + \Delta + i\delta) \delta p'_- \quad (9.34)$$

$$+ \frac{2\mu^* E_p^* p'}{1 - 2n} \delta p'_- + \frac{2\mu^* E_p^* p'^*}{1 - 2n} \delta p'_+.$$

In den Gleichungen (9.33) und (9.34) wurde noch die infinitesimale Dämpfung $\delta=0+$ eingeführt, um die retardierte Lösung zu erhalten. Die ersten beiden Terme in Gleichung (9.33) sind äquivalent zur rechten Seite von Gleichung (9.2). Die Anwesenheit des Pumpstrahles drückt sich in den beiden Termen in der zweiten Zeile aus. Gleichung (9.34) zeigt, daß der Beitrag $\delta p'_-$ zur optischen Polarisation δp keinen Quellterm $\propto E_t$ besitzt und folglich in Abwesenheit des Pumpstrahles verschwindet.

i) Der dynamische Stark-Effekt in linearer Näherung bezüglich der Pumpintensität

Bevor die allgemeine Lösung der Gleichungen (9.33) und (9.34) diskutiert wird, sollen sie linear bezüglich der Intensität des Pumpstrahles betrachtet werden. Dies geschieht hier deshalb, weil später bei der Berechnung des exzitonischen optischen Stark-Effektes in einer analogen Situation analytisch nicht anders fortgesetzt werden kann.

Löst man Gleichung (9.34) nach der Größe $\delta p'_-$ auf, so sieht man, daß dieser Term quadratisch mit der Feldstärke des Pumplasers, also linear mit der Pumpintensität verschwindet. Da der Vorfaktor von $\delta p'_-$ in Gleichung (9.33) ebenfalls $\propto |E_p|^2$ verschwindet, bewirkt die Kopplung von $\delta p'_+$ an $\delta p'_-$ Korrekturen, die wenigstens quadratisch in der Pumpintensität sind. Linear bezüglich der Laserintensität gilt also

$$0 = (\epsilon - \omega_t - i\delta) \delta p'_+ - (1 - 2n) \mu E_t' + 2\mu E_p p'^* \delta p'_+. \quad (9.35)$$

Die Besetzungszahl n ist in diesem Grenzfall nach Gleichung (9.9) durch

$$n \simeq p^* p \quad (9.36)$$

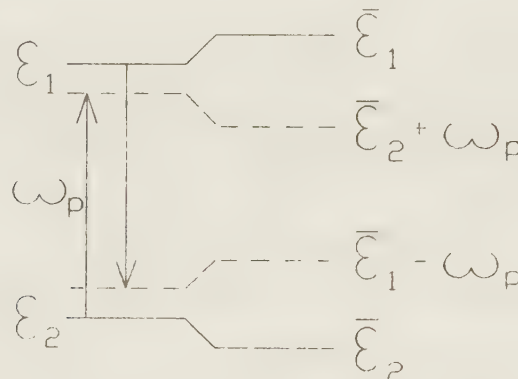
gegeben, und für die optische Polarisation p , Glg. (9.25), ist der lineare Grenzfall

$$p \simeq \frac{\mu E_p}{\epsilon - \omega_p} \quad (9.37)$$

einzusetzen. Gleichung (9.35) hätte man auch für die Größe $\delta p'$ erhalten, wenn man in Gleichung (9.29) die Kopplung der Größe $\delta p'$ an ihr konjugiert Komplexes ignoriert hätte. Für die optische Suszeptibilität (9.32) folgt nun

$$\chi_t(\omega_t) = \frac{(1 - 2n) |\mu|^2}{\epsilon + 2\mu E_p p^* - \omega_t - i\delta}. \quad (9.38)$$

Nach Gleichung (9.38) wird die optische Suszeptibilität des Systems durch die Anwesenheit des Pumpstrahles in zweierlei Hinsicht modifiziert. Die eine Veränderung besteht darin, daß die Oszillatorstärke $|\mu|^2$ um den Faktor $(1-2n)$ vermindert wird. Dieser Sättigungseffekt trat auch bereits in Abschnitt 7.2 bei der Berechnung der linearen optischen Suszeptibilität in Abwesenheit eines Pumpstrahles auf (s. Glg. (7.14)). Der Unterschied zum vorliegenden Fall besteht allerdings darin, daß es sich dort um reelle Anregungen handelte, die nach dem Abklingen des Pumpfeldes weiterexistierten, während hier die Besetzungszahl n nach Gleichung (9.36) und (9.37) mit dem Laserfeld E_p verschwindet.



Figur 9.1. Schematische Darstellung des optischen Stark-Effektes in einem Zwei-Niveau-Modell für den Fall $\omega_p \ll \omega$. Bei endlicher Lichtintensität kommt es zu einer Abstoßung der atomaren Energieniveaus (durchgezogen) und der laserinduzierten Quasi-Energieniveaus (gestrichelt).

Ein ganz neuer Effekt, der sich in Anwesenheit des Pumplasers einstellt, ist die Verschiebung der Resonanzfrequenz ϵ in Gleichung (9.38) um den Wert

$$\Delta\epsilon = 2\mu E_p p^* \quad (9.39a)$$

$$= \frac{2|\mu E_p|^2}{\epsilon - \omega_p}. \quad (9.39b)$$

Der Ausdruck (9.39) ist die dynamische Stark-Verschiebung der atomaren Resonanz, berechnet linear bezüglich der Laserintensität. Wird das Atom unterhalb seiner Resonanzfrequenz getrieben, so handelt es sich um eine Blauverschiebung, andernfalls verschiebt die Resonanz zu niedrigeren Frequenzen. Die Bezeichnung 'dynamischer Stark-Effekt' bringt die Analogie zum Ausdruck, die zwischen diesem Effekt und der Stark-Verschiebung von Energieniveaus in einem statischen elektrischen Feld besteht. Der Ausdruck (9.39a) kann aufgefaßt werden als die zeitlich gemittelte Energie des atomaren Dipols $P = \mu p^* + \mu^* p$ im Laserfeld $E = E_p + E_p^*$. Gleichung (9.39b) ist die störungstheoretische Formel für die Differenz der Energieverschiebungen der beiden atomaren Zustände unter der Störung μE_p . Figur 9.1 zeigt den dynamischen Stark-Effekt schematisch.

ii) Die Intensitätsabhängigkeit des dynamischen Stark-Effektes

Aus den Gleichungen (9.33) und (9.34) folgt für die optische Suszeptibilität χ_t , Glg. (9.32), die Formel

$$\chi_t(\omega_t) = |\mu|^2 \operatorname{sign}(\epsilon - \omega_p) \left[\frac{|u|^4}{\Omega - \Delta - i\delta} + \frac{|v|^4}{\Omega + \Delta + i\delta} \right]. \quad (9.40)$$

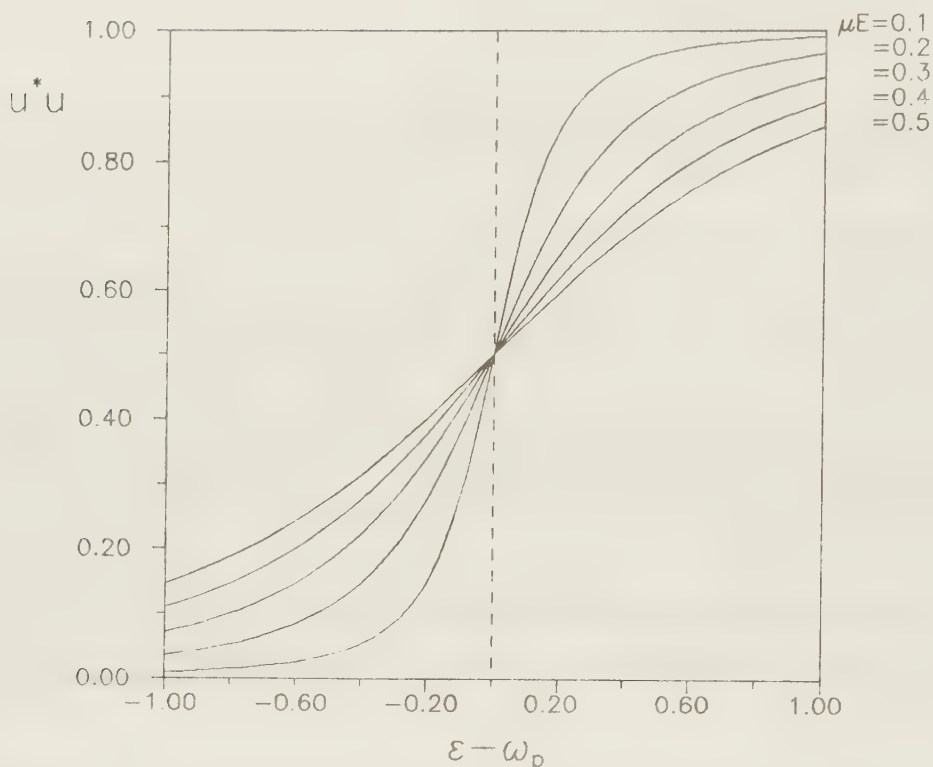
Die Frequenz Ω in Gleichung (9.40) ist die bekannte Rabi-Frequenz

$$\Omega = \sqrt{(\epsilon - \omega_p)^2 + 4|\mu E_p|^2}. \quad (9.41)$$

Die spektralen Gewichte $|u|^2$ und $|v|^2$ sind gegeben durch

$$|u|^2 = 1 - |v|^2 = \frac{1}{2} \left[1 + \frac{\epsilon - \omega_p}{\Omega} \right]. \quad (9.42)$$

In unserer Arbeit [44] haben wir gezeigt, wie sich die Rabi-Frequenz Ω und die spektralen Gewichte $|u|^2$ und $|v|^2$ mit Hilfe der Greenschen Funktionen $G_{\rho\nu}^r$, Glg. (8.11) und (8.13), berechnen lassen. Bei der Diagonalisierung des Hamiltonoperators (9.1) des getriebenen Atoms mit Hilfe einer Bogoljubov-Transformation bildet Ω die Energie des Quasiteilchens, das aus der kohärenten Überlagerung der Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ entsteht, und die Größen u und v sind die Koeffizienten der Matrix der unitären Transformation [85]. In Figur 9.2 ist der Verlauf der Gewichtsfunktion $|u|^2$ als Funktion der Verstimmung $\epsilon - \omega_p$ für verschiedene Pumpintensitäten $|E_p|^2$ aufgetragen.



Figur 9.2. Die Gewichtsfunktion $|u|^2$ als Funktion der Verstimmung $\epsilon - \omega_p$ für verschiedene Laserfeldstärken E_p ($\epsilon - \omega_p$ und μE_p in denselben willkürlichen Einheiten).

Für verschwindende Intensität wird $|u|^2$ zu

$$|u|^2 = \frac{1}{2} (1 + \text{sign}(\epsilon - \omega_p)). \quad (9.43)$$

In diesem Fall reduziert sich die optische Suszeptibilität (9.40) zur optischen Suszeptibilität des Atoms in seinem Grundzustand.

Nach Gleichung (9.40) besitzt das optische Spektrum des kohärent getriebenen Atoms zwei Resonanzfrequenzen $\omega_{\pm} = \Omega_{\pm}$ mit

$$\Omega_{\pm} = \omega_p \pm \Omega. \quad (9.44)$$

Eine dieser beiden Resonanzen läßt sich im folgenden als die durch den dynamischen Stark-Effekt verschobene ursprüngliche Resonanz identifizieren. Um dies zu sehen, und um die Bedeutung der zweiten Resonanz zu erkennen, sollen die Frequenzen (9.44) zunächst für kleine Laserintensitäten betrachtet werden. Durch Entwicklung der Quadratwurzel in Gleichung (9.41) folgt

$$\Omega_{\pm} \simeq \omega_p \pm (|\epsilon - \omega_p| + |\Delta\epsilon|), \quad (9.45)$$

worin $\Delta\epsilon$ die in Gleichung (9.39) definierte lineare Stark-Verschiebung ist. Wird das Atom unterhalb seiner Anregungsfrequenz gepumpt, so gilt

$$\Omega_+ \simeq \epsilon + \Delta\epsilon, \quad (9.46a)$$

$$\Omega_- \simeq 2\omega_p - (\epsilon + \Delta\epsilon) \quad (9.46b)$$

$$\text{für } \epsilon > \omega_p.$$

Für $\epsilon < \omega_p$ dagegen ergibt sich

$$\Omega_+ \simeq 2\omega_p - (\epsilon + \Delta\epsilon), \quad (9.47a)$$

$$\Omega_- \simeq \epsilon + \Delta\epsilon \quad (9.47b)$$

$$\text{für } \epsilon < \omega_p.$$

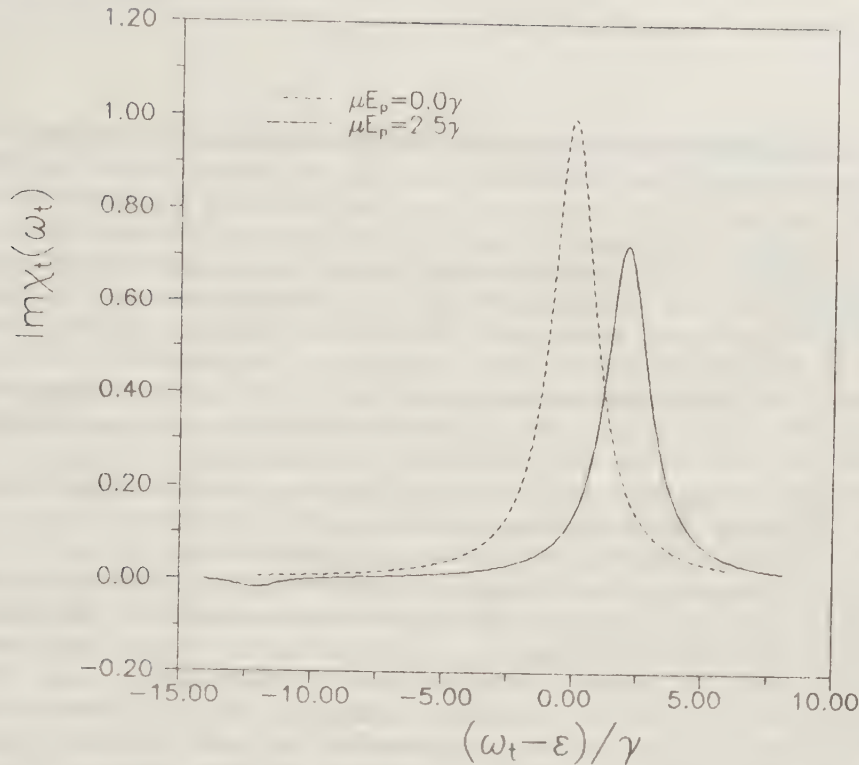
Offenbar vertauschen die Frequenzen $\Omega_{\pm}$ ihre Bedeutung, sobald die Laserfrequenz ω_p die atomare Resonanz passiert. Für $\omega_p < \epsilon$ wird die durch den Stark-Effekt verschobene atomare Resonanzfrequenz durch die Frequenz Ω_+ repräsentiert, und für $\omega_p > \epsilon$ übernimmt die Frequenz Ω_- diese Bedeutung. Man definiert deshalb die Energie

$$\bar{\epsilon} = \Omega_+ \quad \text{für } \epsilon > \omega_p \quad (9.48)$$

$$= \Omega_- \quad \text{für } \epsilon < \omega_p$$

als die Energie der verschobenen atomaren Resonanz [23, 33]. Nach Figur 9.2 besitzt die Resonanz $\bar{\epsilon}$ auch jeweils das größere spektrale Gewicht. Verwendet man nun ferner, daß nach Gleichung (9.26) und Gleichung (9.42) gilt

$$|u|^2 = 1 - n \quad \text{für } \epsilon > \omega_p \quad (9.49)$$



Figur 9.3. Der optische Stark-Effekt in einem Zweiniveau-Modell. Die Verstimmung beträgt $\epsilon - \omega_p = 5\gamma$.

In diesem Zusammenhang sei noch erwähnt, daß man bei der Berechnung des Absorptionsspektrums mit Hilfe der von vornherein gedämpften Maxwell-Bloch-Gleichungen (9.10-11) ein geringfügig anderes Ergebnis erhält [81]. In einer solchen Rechnung findet man neben den Resonanzen $\omega_t \simeq \Omega_{\pm}$ eine zusätzliche schwache spektrale Struktur bei der Frequenz $\omega_t \simeq \omega_p$. Dabei handelt es sich um die Terme $\propto |u|^2|v|^2$ und $|v|^2|u|^2$, die sich in der Rechnung ohne Dämpfungskonstanten exakt kompensieren. Diese Terme beschreiben eine durch das Atom vermittelte stimulierte Streuung eines Teststrahlphotons in den Pumpstrahl bzw. den umgekehrten Vorgang ('stimulierte Rayleigh-Streuung' [81]). Natürlich läßt sich die Rechnung mit Dämpfungskonstanten für das einfache Zweiniveau-Modell ebenfalls leicht durchführen. Darauf habe ich hier jedoch verzichtet, da für die folgenden Berechnungen zum exzitonischen optischen Stark-Effekt ein zu Gleichung (9.7) analoger Erhaltungssatz sehr wertvoll ist, der aber in dieser Form nur im rein kohärenten Regime gültig ist.

9.2 Der quasistationäre exzitonische optische Stark-Effekt

In diesem Abschnitt wird ausführlich die Theorie des quasistationären exzitonischen optischen Stark-Effektes diskutiert, obwohl sich gezeigt hat, daß die vorliegenden experimentellen Ergebnisse merklich von dynamischen Effekten beeinflußt sind. Dieses Vorgehen hat verschiedene Gründe:

Zum einen ist es sinnvoll, unterschiedliche Effekte, die in den Experimenten überlagert auftreten, in der Theorie voneinander zu trennen. So konnten wir theoretisch zeigen, daß die anfängliche Interpretation des exzitonischen optischen Stark-Effektes ganz unrichtig war: der Effekt kann weder mit Hilfe des Zweiniveau-Modells erklärt werden, noch genügt zur Erklärung der Beobachtungen die quasistationäre Theorie. Beide unrichtigen Annahmen zusammen lieferten zufälligerweise ein scheinbar korrektes Bild.

Zum anderen ist es auch außerordentlich schwierig, zeitabhängige Vielteilchentheorie zu betreiben. Mit analytischen Mitteln ist dies praktisch nicht möglich, so daß man allein auf komplizierte numerische Berechnungen angewiesen ist, deren Resultate schwer kontrollierbar und für andere Physiker kaum nachvollziehbar sind. In unserer Arbeitsgruppe wurde stattdessen von einem meiner Kollegen (L. Banyai) eine Methode angewandt, nach der sich unsere Ergebnisse für den quasistationären exzitonischen optischen Stark-Effekt im Rahmen einer gewissen Näherung auch zur Deutung des zeitabhängigen optischen Stark-Effektes verwenden lassen (s. Abschnitt 9.3).

Schließlich bin ich durch meine Berechnungen zu den Korrelationseffekten in einem System virtueller Elektron-Loch-Paare, die ich im abschließenden Kapitel dieser Arbeit darstellen werde, zu der Ansicht gelangt, daß der exzitonische optische Stark-Effekte tatsächlich auch unter quasistationären Bedingungen meßbar sein könnte. Zwar sind es gerade die enorm kurzen Ansprechzeiten, die den dynamischen Stark-Effekt für die angewandte Physik interessant machen. Aus theoretischer Sicht wäre aber auch der Nachweis dieses Effektes unter quasistationären Bedingungen interessant, denn dies würde demonstrieren, um welche eigenartige neue Zustandsform es sich bei virtuellen Ladungsträgern handelt. Erst durch diesen Nachweis wäre auch eine einwandfreie experimentelle Verifikation der Hartree-Fock-Theorie möglich, die als ausreichend zur theoretischen Behandlung virtueller Elektron-Loch-Paare gilt.

9.2.1 Argumente für die Verwendbarkeit der Hartree-Fock-Approximation

Eine Theorie des exzitonischen optischen Stark-Effektes wurde erstmals von S. Schmitt-Rink gegeben [19]. In dieser Theorie wird die Coulombwechselwirkung der virtuellen Elektron-Loch-Paare im Rahmen der Hartree-Fock-Approximation (s. Abschnitt 3.4) behandelt, Korrelationseffekte zwischen den Ladungsträgern werden also vernachlässigt. Als Begründung für die Annahme, daß Korrelationseffekte im Falle virtueller Ladungsträger eine untergeordnete Rolle spielen, wurden folgende Argumente genannt:

1.) Während der Hartree-Fock-Beitrag zur Selbstenergie den instantanen Anteil der Coulombwechselwirkung angibt, der bereits im Augenblick der Entstehung der Elektron-Loch-Paare wirksam ist, beschreibt die Korrelationsselfstenergie diejenigen Anteile, die sich überwiegend erst mit einer gewissen zeitlichen Verzögerung einstellen. Das sind die inelastischen Streuprozesse und die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger. In den durchgeführten Experimenten lag die Pulsdauer der Laserstrahlen im Subpikosekundenbereich ($\approx 10^{-14}$ – 10^{-13} s) und unterschritt damit sogar die mittleren Streuzeiten von Ladungsträgern in dichten Elektron-Loch-Plasmen ($\approx 10^{-13}$ – 10^{-12} s). Deshalb ist anzunehmen, daß es in den Experimenten nicht zu nennenswerten Korrelationseffekten unter den Ladungsträgern kam.

2.) Die gegenseitige Abschirmung und die Streuung von Ladungsträgern ist mit virtuellen bzw. mit reellen Übergängen in angeregte Zustände verbunden. Virtuellen Elektron-Loch-Paaren ist in Wechselwirkungsprozessen die Laserfrequenz ω_p als Energie zuzuordnen (s. Abschnitt 10.1). Der erste angeregte Zustand, der für virtuelle Elektron-Loch-Paare verfügbar ist, ist der $1s$ -Zustand mit der Energie ω_{1s} . Virtuelle Ladungsträger müssen somit, um an Wechselwirkungsprozessen teilnehmen zu können, wenigstens die Energielücke $\omega_{1s} - \omega_p$ überwinden. Diese Energielücke, die gerade die Verstimmung des Pumpstrahles gegen das Exzitonspektrum darstellt, beträgt in den durchgeführten Experimenten ein Mehrfaches der Exzitonbindungsenergie. Hieraus folgt, daß virtuelle Elektron-Loch-Paare nur einen schwachen dielektrischen Beitrag zur Abschirmung liefern und gar nicht an reellen Streuprozessen teilnehmen können. Dieses Argument, das auch unter quasistationären Bedingungen gültig ist, wird in Kapitel 10 noch ausführlich ausgearbeitet.

3.) Die Experimente zum exzitonischen optischen Stark-Effekt wurden überwiegend an Halbleiterschichtstrukturen durchgeführt. In diesen Strukturen ist die Bewegungsfreiheit der Ladungsträger in der Richtung senkrecht zur Schichtebene eingeschränkt. Mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie ist es heute möglich, Halbleiterschichten herzustellen, deren Dicke vergleichbar mit dem Bohrschen Radius von Wannier-Exzitonen oder sogar kleiner als dieser ist. In diesem Fall gehen die Eigenschaften des Systems der Ladungsträger in die eines zweidimensionalen Quantensystems über. Es ist bekannt, daß die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger in einem quasizweidimensionalen System von Elektron-Loch-Paaren schwächer ausgeprägt ist als in einem ausgedehnten Halbleiter [66]. Man kann sich vorstellen, daß sich die Ladungsträger bei der Bewegung in zwei Dimensionen, beispielsweise bei der Ausbildung des Coulombbloches, stärker gegenseitig behindern als bei der Bewegung in drei Dimensionen. Auch aus diesem Grund sollten also Korrelationsbeiträge zur Selbstenergie in erster Näherung vernachlässigbar sein.

Aufgrund der genannten Argumente wird die Hartree-Fock-Approximation der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger als ausreichend zur Beschreibung des exzitonischen optischen Stark-Effektes angesehen. In diesem Abschnitt werde ich, ausgehend von der Gleichung der optischen Polarisation in der Hartree-Fock-Näherung, Glg. (3.26), die Theorie des exzitonischen Stark-Effektes nach S. Schmitt-Rink et al. [23] formulieren und unsere Ergebnisse zur Auswertung dieser Theorie vorstellen. In Kapitel 10 werde ich dann die allgemeinere Gleichung (5.54) zum Ausgangspunkt nehmen, um nachzuweisen, daß Korrelationsbeiträge zum exzitonischen optischen Stark-Effekt tatsächlich sogar unter quasistationären Bedingungen vernachlässigbar sind.

9.2.2 Die Hartree-Fock-Theorie des exzitonischen optischen Stark-Effektes

Zu Beginn sei nochmals die Gleichung der optischen Polarisation in der Hartree-Fock-Näherung, Glg. (3.26), notiert:

$$i\dot{p}_{\mathbf{k}} = (e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}}) p_{\mathbf{k}} - (n_{v\mathbf{k}} - n_{c\mathbf{k}}) W_{\mathbf{k}}. \quad (9.52)$$

Hierbei wurde die Abkürzung

$$W_{\mathbf{k}} = \mu_{\mathbf{k}} E_0 + \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'} \quad (9.53)$$

für das effektive Feld eingeführt. Für die Besetzungszahlen $n_{\rho\mathbf{k}}$ erhält man im Rahmen der Hartree-Fock-Approximation, etwa mit Hilfe von Gleichung (5.54),

$$\dot{n}_{c\mathbf{k}} = - \dot{n}_{v\mathbf{k}} \quad (9.54a)$$

$$= i(W_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}^* - W_{\mathbf{k}}^* p_{\mathbf{k}}). \quad (9.54b)$$

Unter der Annahme, daß sich das System vor der Einwirkung des Laserstrahls im Grundzustand befunden habe, folgt aus Gleichung (9.54a)

$$n_{c\mathbf{k}} = 1 - n_{v\mathbf{k}} =: n_{\mathbf{k}}. \quad (9.55)$$

Die Beziehung (9.55) ist eine Besonderheit des kohärent getriebenen Systems. In einem System reeller Ladungsträger, beispielsweise in einem Elektron-Loch-Plasma, ist die Beziehung (9.55) im allgemeinen nicht erfüllt. Mit Gleichung (9.55) und der Identifikation $W=E_p$ sind die Gleichungen (9.52) und (9.54) formal identisch mit den Gleichungen (9.2) und (9.5) des Zweiniveau-Modells. Folglich findet man auch hier den zu Gleichung (9.7) analogen Erhaltungssatz

$$(1 - 2n_{\mathbf{k}})^2 + 4|p_{\mathbf{k}}|^2 = 1. \quad (9.56)$$

Diese nützliche Beziehung gilt, obwohl durch das Coulombpotential $V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}$ in der Größe $W_{\mathbf{k}}$, Glg. (9.53), verschiedene $\mathbf{k}$ -Zustände miteinander gekoppelt werden. Mit Hilfe von Gleichung (9.56) können die Besetzungszahlen eliminiert werden durch

$$n_{\mathbf{k}} = \frac{1}{2} (1 \mp \sqrt{1 - 4|p_{\mathbf{k}}|^2}). \quad (9.57)$$

Im Rahmen einer adiabatischen Näherung (vgl. (Glg. (9.25-26)) gilt in Gleichung (9.57) das Minuszeichen. Für die optische Polarisierung, die sich unter dem Einfluß des Pumpstrahles ($E_0=E_p$) einstellt, folgt aus Gleichung (9.52) in der adiabatischen Näherung (9.25)

$$p_{\mathbf{k}} \simeq \frac{(1 - 2n_{\mathbf{k}}) W_{\mathbf{k}}}{e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}} - \omega_p}. \quad (9.58)$$

Gleichung (9.58) stellt zusammen mit Gleichung (9.57) eine nichtlineare Integralgleichung für die optische Polarisierung dar. Eine solche nichtlineare Integralgleichung ist bedeutend schwieriger zu behandeln, als etwa die lineare Integralgleichung (7.14). Ist dieses Problem gelöst, so läßt sich, wie in Abschnitt 9.1.5, die Reaktion des quasistationär getriebenen Systems auf einen zusätzlich einwirkenden Teststrahl berechnen. Hierzu sei wie in den Gleichungen (9.28-30) eine Linearisierung der Gleichungen (9.52) und (9.57) durchgeführt:

$$i\delta p'_{\mathbf{k}} = (e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}} - \omega_p) \delta p'_{\mathbf{k}} - (1 - 2n_{\mathbf{k}}) \delta W'_{\mathbf{k}} \quad (9.59)$$

$$+ \delta(e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}}) p'_{\mathbf{k}} + 2\delta n_{\mathbf{k}} W'_{\mathbf{k}},$$

$$\delta n_{\mathbf{k}} = \frac{p_{\mathbf{k}}^* \delta p'_{\mathbf{k}} + p'_{\mathbf{k}} \delta p_{\mathbf{k}}^*}{1 - 2n_{\mathbf{k}}}. \quad (9.60)$$

Die Größe $\delta W'_{\mathbf{k}}$ in Gleichung (9.59) ist gegeben durch

$$\delta W'_{\mathbf{k}} = \mu_{\mathbf{k}} E'_t e^{-i\Delta t} + \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \delta p'_{\mathbf{k}'}. \quad (9.61)$$

mit $\Delta = \omega_t - \omega_p$. Im Vergleich zu Gleichung (9.29) tritt in Gleichung (9.59) zusätzlich die

Variation $\delta(e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}})$ auf, da die renormierten Einteilchenenergien $e_{\rho\mathbf{k}}$ nach Gleichung (3.28) von den Besetzungszahlen $n_{\rho\mathbf{k}}$ abhängen. Die Gleichungen (9.59) und (9.60) sind durch einen zu (9.31) analogen Ansatz zu lösen,

$$\delta p'_{\mathbf{k}} = \delta p'_{\mathbf{k},+} e^{-i\Delta t} + \delta p'^{*}_{\mathbf{k},-} e^{+i\Delta t}. \quad (9.62)$$

Es resultieren dann zwei gekoppelte Integralgleichungen für die Größen $\delta p'_{\mathbf{k},\pm}$. Dieses Gleichungssystem, zusammen mit der nichtlinearen Integralgleichung (9.58) für die optische Polarisierung, die vom Pumpstrahl verursacht wird, wurde in unserer Arbeitsgruppe von meiner Kollegin C. Ell numerisch gelöst. Ihre Ergebnisse sind in unserer gemeinsamen Arbeit [86] erschienen. C. Ell fand das überraschende Resultat, daß die optische Oszillatorstärke der Exzitonresonanz, in scheinbarem Widerspruch zu den bis zu diesem Zeitpunkt vorliegenden experimentellen Ergebnissen [24, 25, 26], mit zunehmender Pumpintensität nicht sättigen sondern eher zunehmen sollte. Für den Grenzfall eines zweidimensionalen Systems ergab sich eine nahezu konstante Oszillatorstärke, und im Falle eines ausgedehnten Kristalls nahm die Oszillatorstärke sogar zu. Dieses theoretische Ergebnis wurde auch von der Arbeitsgruppe um W. Schäfer berichtet [87]. Experimentell hatte man dagegen, wie beim quasistationären atomaren optischen Stark-Effekt (s. Glg. (9.38) bzw. (9.50) und Figur 9.3), ein Sättigungsverhalten der Exzitonresonanz beobachtet und diese Sättigung als Folge der Auffüllung des Fermionenzustandsraumes gedeutet.

In dieser Phase der Untersuchungen schien es so, als sei die Hartree-Fock-Theorie doch nicht geeignet, um den exzitonischen Stark-Effekt korrekt zu beschreiben. Um das überraschende theoretische Ergebnis von C. Ell und W. Schäfer genauer verstehen zu können, begann ich eine störungstheoretische Untersuchung der Gleichungen (9.57-60) für niedrige Ladungsträgerdichten.

9.2.3 Störungstheorie bezüglich der Dichte der virtuellen Ladungsträger

In erster Ordnung bezüglich der Laserintensität bzw. bezüglich der Dichte der virtuellen Elektron-Loch-Paare ergeben sich einige Vereinfachungen in der Theorie. In Abschnitt 9.1.5, Glg. (9.33-34), wurde erkennbar, daß die Kopplung der optischen Polarisierung $\delta p'_+$ an die Größe $\delta p'_-$ Korrekturen zum optischen Stark-Effekt liefert, die wenigstens quadratisch in der Laserintensität sind. Insbesondere stammt von diesen Beiträgen die optische Verstärkung, die bei der Frequenz $\omega_t = 2\omega_p - \bar{\epsilon}$ auftritt. In erster Ordnung bezüglich der Laserintensität ist demnach die Kopplung von $\delta p'_{\mathbf{k},+}$ an $\delta p'_{\mathbf{k},-}$ zu vernachlässigen, und man erhält

$$0 = (e_{c\mathbf{k}} - e_{v\mathbf{k}} - \omega_t - i\delta) \delta p'_{\mathbf{k},+} - (1 - 2n_{\mathbf{k}}) \delta W'_{\mathbf{k},+} \quad (9.63)$$

$$+ p'_{\mathbf{k}} (\delta e_{c\mathbf{k},+} - \delta e_{v\mathbf{k},+}) + 2W'_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}^* \delta p'_{\mathbf{k},+},$$

wobei

$$\delta W'_{\mathbf{k},+} = \mu_{\mathbf{k}} E'_t + \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \delta p'_{\mathbf{k}',+}, \quad (9.64)$$

$$\delta e_{c\mathbf{k},+} - \delta e_{v\mathbf{k},+} = -2 \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'}^* \delta p'_{\mathbf{k}',+}. \quad (9.65)$$

Für die Besetzungszahlen $n_{\mathbf{k}}$ in Gleichung (9.63) ist nach Gleichung (9.57)

$$n_{\mathbf{k}} \simeq p_{\mathbf{k}}^* p_{\mathbf{k}} \quad (9.66)$$

einzusetzen. Die optische Polarisation $p_{\mathbf{k}}$, die vom Pumpstrahl hervorgerufen wird, geht in Gleichung (9.63) nur in der linearen Näherung (3.56) ein, die sich numerisch mit Hilfe der Coulomb-Greensfunktion (3.57) leicht berechnen läßt. Wie in Abschnitt 7.4, bei der Behandlung der exzitonischen Polarisation eines Elektron-Loch-Plasmas niedriger Dichte, läßt sich die Gleichung der optischen Polarisation nun auf die Form einer gestörten Wanniergleichung mit einem Quellterm bringen. Aus Gleichung (9.63) wird

$$\sum_{\mathbf{k}'} [H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'} + \Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - (\omega_t + i\delta) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}] \delta p'_{\mathbf{k}',+} = (1 - 2n_{\mathbf{k}}) \mu_{\mathbf{k}} E'_t, \quad (9.67)$$

mit der Hamiltonfunktion $H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ aus Gleichung (3.38). Der Störterm $\Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ ist hier gegeben durch

$$\Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = 2\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \mu_{\mathbf{k}} E_p p_{\mathbf{k}}^* \quad (9.68)$$

$$+ 2n_{\mathbf{k}} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} - 2\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \sum_{\mathbf{k}''} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} n_{\mathbf{k}''}$$

$$+ 2\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}}^* \sum_{\mathbf{k}''} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} p_{\mathbf{k}''} - 2p_{\mathbf{k}} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} p_{\mathbf{k}'}^*.$$

Der erste Term in Gleichung (9.68) entspricht dem Ausdruck (9.39a), der die Stark-Verschiebung im atomaren System angibt. Da das Produkt $E_p p_{\mathbf{k}}^*$ die Vernichtung eines Pumpphotons und die Erzeugung eines virtuellen Elektron-Loch-Paares darstellt, spricht man bei diesem Term von dem Beitrag der anharmonischen Exziton-Photon-Wechselwirkung zum exzitonischen Stark-Effekt. Diese Sprechweise hat sich eingebürgert, obwohl es strenggenommen nur für sehr kleine Verstimmung der Pumpfrequenz zur Exzitonresonanz gerechtfertigt ist, virtuelle Elektron-Loch-Paare als virtuelle Exzitonen zu bezeichnen. Denn beträgt die Verstimmung ein Mehrfaches der Exzitonbindungsenergie, so befindet sich bereits ein nennenswerter Anteil der virtuellen Elektron-Loch-Paare in exzitonischen Streuzuständen [20].

Die zweite Zeile in Gleichung (9.68) gibt die Hartree-Fock-Korrektur zur Hamiltonfunktion an. Dieser Beitrag entspricht völlig der zweiten Zeile in Gleichung (7.21), die die (abgeschirmte) Hartree-Fock-Renormierung der Exzitonresonanz in Anwesenheit eines Elektron-Loch-Plasmas beschreibt. Im vorliegenden Fall handelt es sich um die entsprechende Renormierung durch virtuelle Elektron-Loch-Paare. Da nach Gleichung (9.66) in dieser sowie in der dritten Zeile jeweils zwei Elektron-Loch-Paaramplituden $p_{\mathbf{k}}$ bzw. $p_{\mathbf{k}}^*$ auftreten, spricht man hier von den Beiträgen der Exziton-Exziton-Wechselwirkung zum exzitonischen Stark-Effekt.

Setzt man die dritte Zeile von Gleichung (9.68) in die modifizierte Wanniergleichung (9.67) ein, so stellt man fest, daß hier gegenüber den Beiträgen der zweiten Zeile jeweils gerade die Paaramplituden p' und $\delta p'_+$ miteinander vertauscht sind. Offenbar haben in dem dabei beschriebenen Wechselwirkungsprozess ein virtuelles Elektron-Loch-Paar und das vom Testfeld erzeugte Elektron-Loch-Paar ihre Rollen getauscht. In diesem Sinne stellen die zweite und die dritte Zeile in Gleichung (9.68) eine Boson-Hartree- und eine Boson-Austausch-Selbstenergie dar [23]. Diese Sprechweise entspricht auch ganz der Bezeichnungsweise in der Theorie reeller Exzitonsysteme [88]. In Gleichung (7.21) traten nur die Boson-Hartree-Terme auf, denn dort wurde angenommen, daß die vom Pumpstrahl hervorgerufene optische Polarisation bereits abgeklungen ist (vgl. Glg. (7.12-13)).

Durch eine Entwicklung der optischen Polarisation $\delta p'_+$ nach ungestörten Exzitonwellenfunktionen gemäß Gleichung (3.42) erhält man das Gleichungssystem

$$\sum_{\mathbf{n}'} [(\omega_{\mathbf{n}} - \omega_{\mathbf{t}} - i\delta) \delta_{\mathbf{nn}'} + \Delta H_{\mathbf{nn}'}] \delta p'_{\mathbf{n},+} = \sum_{\mathbf{k}} \phi_{\mathbf{nk}}^* (1 - 2n_{\mathbf{k}}) \mu_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{t}}'. \quad (9.69)$$

Im Exzitonbild ist die Paarselbstenergie (9.68) gegeben durch

$$\Delta H_{\mathbf{nn}'} = \Pi_{\mathbf{nn}'} + \Delta_{\mathbf{nn}'}. \quad (9.70)$$

Hierin ist

$$\Pi_{nn'} = 2E_p \sum_{\mathbf{k}} \phi_{n\mathbf{k}}^* \mu_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}^* \phi_{n'\mathbf{k}} \quad (9.71)$$

der Beitrag der anharmonischen Exziton-Photon-Wechselwirkung, und

$$\Delta_{nn'} = 2 \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \phi_{n\mathbf{k}}^* (p_{\mathbf{k}}^* - p_{\mathbf{k}'}^*) (p_{\mathbf{k}} \phi_{n'\mathbf{k}'} + p_{\mathbf{k}'} \phi_{n'\mathbf{k}}) \quad (9.72)$$

ist der Beitrag der Exziton-Exziton-Wechselwirkung. In dem Ausdruck (9.72) kommt es wie in Gleichung (7.32) wieder zu einer gewissen Kompensation zwischen den Selbstenergiekorrekturen ($\propto p_{\mathbf{k}'}^*$) und den Vertexkorrekturen ($\propto p_{\mathbf{k}}$). Zur näherungsweisen Lösung sei Gleichung (9.69) umgestellt zu

$$\delta p'_{n,+} = \frac{\sum \phi_{n\mathbf{k}}^* (1 - 2n_{\mathbf{k}}) \mu_{\mathbf{k}} E_t' - \sum' \Delta H_{nn'} \delta p'_{n',+}}{\bar{\omega}_n - \omega_t - i\delta}. \quad (9.73)$$

Hierin bezeichnet

$$\sum' = \sum_{n', n' \neq n},$$

und $\bar{\omega}_n$ ist die renormierte Exzitonenergie

$$\bar{\omega}_n = \omega_n + \Delta H_{nn}. \quad (9.74)$$

Gleichung (9.73) läßt sich iterativ lösen. Die erste Näherungslösung ist

$$\delta p'_{n,+} \approx \frac{\mu_n E_t'}{\bar{\omega}_n - \omega_t - i\delta}. \quad (9.75)$$

Das hier angewandte Verfahren entspricht der 'verschobenen Störungsentwicklung' (8.34). Der Ausdruck (9.75) besitzt die Gestalt der linearen Lösung (3.47), enthält aber wenigstens bereits die Energieverschiebung ΔH_{nn} . Ungünstig wäre es stattdessen gewesen, eine Iteration mit der linearen Lösung (3.47) durchzuführen. Setzt man Gleichung (9.75) auf der rechten Seite von Gleichung (9.73) ein, so ergibt sich für die optische Suszeptibilität χ_t gemäß Gleichung (9.32)

$$\chi_t(\omega_t) = 2 \sum_n \frac{\mu_n^* \delta p_{n,+}}{E_t} \quad (9.76)$$

$$= 2 \sum_n \frac{\mu_n^*}{\bar{\omega}_n - \omega_t - i\delta} \left[\sum_k \phi_{nk}^* (1 - 2n_k) \mu_k - \sum_{n', n' \neq n} \frac{\Delta H_{nn'} \mu_{n'}}{\bar{\omega}_{n'} - \omega_t - i\delta} \right]$$

mit einem Faktor zwei für die Spinentartung. Für den zweiten Term in Gleichung (9.76) liefert eine Partialbruchzerlegung

$$\frac{1}{\bar{\omega}_n - \omega_t - i\delta} \frac{1}{\bar{\omega}_{n'} - \omega_t - i\delta} = \frac{1}{\bar{\omega}_{n'} - \bar{\omega}_n} \left[\frac{1}{\bar{\omega}_n - \omega_t - i\delta} - \frac{1}{\bar{\omega}_{n'} - \omega_t - i\delta} \right]. \quad (9.77)$$

In Gleichung (9.77) kann nun die Näherung

$$\bar{\omega}_{n'} - \bar{\omega}_n \simeq \omega_{n'} - \omega_n \quad (9.78)$$

vorgenommen werden. Damit gelangt man zu einem Ausdruck für die optische Suszeptibilität (9.76), der dieselbe Gestalt besitzt, wie die Elliott-Formel (3.51):

$$\chi_t(\omega_t) = 2 \sum_n \frac{\bar{f}_n}{\bar{\omega}_n - \omega_t - i\delta}. \quad (9.79)$$

Hierin ist die renormierte optische Oszillatorstärke $\bar{f}_n$ gegeben durch [23, Glg. (66)]

$$\tilde{f}_n = f_n - 2\mu_n^* \sum_{\mathbf{k}} \phi_{n\mathbf{k}}^* n_{\mathbf{k}} \mu_{\mathbf{k}} - \sum_{n', n' \neq n} \frac{\mu_n^* \Delta H_{nn'} \mu_{n'} + (n \longleftrightarrow n')}{\omega_{n'} - \omega_n}. \quad (9.80)$$

mit der ungestörten Oszillatorstärke $f_n = |\mu_n|^2$. Die erste Korrektur in Gleichung (9.80) resultiert aus der Verminderung des Quellterms $\propto E_t$ in Gleichung (9.69) infolge der Auffüllung des Fermion-Zustandsraumes. Nach der Summenregel (5.34) bewirkt dieser Term eine Abnahme der integralen Oszillatorstärke des optischen Spektrums. Dieser Beitrag liefert auch in jedem Fall eine Reduktion der optischen Oszillatorstärke der Exzitonresonanz. Die zweite Korrektur in Gleichung (9.80), die für die Zunahme der exzitonischen Oszillatorstärke verantwortlich sein muß, stammt von den Nichtdiagonalelementen $\Delta H_{nn'}$ der Exzitonselbstenergie. Diese Terme beschreiben die Deformation der Exzitonwellenfunktionen in Anwesenheit der virtuellen Elektron-Loch-Paare und in Anwesenheit des kohärenten Laserfeldes. Zu dieser Korrektur der optischen Oszillatorstärke kann man auch gelangen, indem man in dem optischen Matrixelement μ_n , Glg. (3.46), die ungestörte Exzitonwellenfunktion $|n\rangle$ durch die Wellenfunktion in der ersten Ordnung der Störungstheorie ersetzt:

$$|n\rangle \rightarrow |n\rangle - \sum_{n', n' \neq n} \frac{\Delta H_{nn'}}{\omega_{n'} - \omega_n} |n'\rangle. \quad (9.81)$$

Im Falle eines Exzitons, das sich in einem Elektron-Loch-Plasma bewegt (s. Abschnitt 7.4), liefert auch diese Korrektur eine Reduktion der optischen Oszillatorstärke, denn durch die Abschirmung der Coulombanziehung und durch die Phasenraumfüllung wird die Bindungsenergie des Exzitons verringert. Deshalb ist die Wahrscheinlichkeit, Elektron und Loch am selben Ort zu finden, und somit auch das Matrixelement (3.55) vermindert. Für das kohärent getriebene System von Elektron-Loch-Paaren dagegen findet man eine Zunahme der Exzitonbindungsenergie und damit eine Verstärkung des optischen Matrixelementes. Es folgt nun eine Schilderung meiner Auswertung der Formel (9.74) für die renormierten Paarenergien $\tilde{\omega}_n$ und der Formel (9.80) für die renormierte Oszillatorstärke $\tilde{f}_1$.

9.2.4 Die Stark-Verschiebung der Exzitonresonanz

Die laserinduzierte Verschiebung der Paarenergien ist nach Gleichung (9.74) durch die Diagonalelemente ΔH_{nn} der Exzitonselbstenergie (9.70) gegeben. Wie in Abschnitt 7.4 sollen die Verschiebung der Exzitonresonanz ($n=1$) und der Bandkante ($n \rightarrow \infty$) berechnet werden.

i) Der Beitrag der anharmonischen Exziton-Photon-Wechselwirkung zur Stark-Verschiebung

Der Beitrag Π der anharmonischen Exziton-Photon-Wechselwirkung zur Exziton-Selbstenergie, Glg. (9.71), läßt sich mit Hilfe der Coulomb-Greensfunktion G , Glg. (3.57), schreiben als

$$\Pi_{nn'} = 2|\mu E_p|^2 \sum_{\mathbf{k}} \phi_{n\mathbf{k}}^* G(\mathbf{k}, \omega_p) \phi_{n'\mathbf{k}} \quad (9.82)$$

mit $G(\mathbf{k}, \omega_p) = G(\mathbf{k}, \mathbf{r}'=0, \omega_p)$. Hier und im folgenden ist wieder die schwache k -Abhängigkeit des optischen Matrixelementes $\mu_{\mathbf{k}}$, Glg. (2.65a), vernachlässigt, da sie nicht zur Konvergenz der auftretenden Integrale benötigt wird. Zunächst soll das asymptotische Verhalten des Ausdrucks (9.82) als Funktion der Laserfrequenz ω_p analysiert werden. Liegt die Laserfrequenz ω_p weit unterhalb (oder weit oberhalb) der Bandkante, so geht die Coulomb-Greensfunktion (3.57) über in die Greensche Funktion unkorrelierter Elektron-Loch-Paare [20],

$$G(\mathbf{k}, \omega_p) \rightarrow \frac{1}{\omega_{\mathbf{k}} - \omega_p} \quad (9.83a)$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0,$$

wobei $\omega_{\mathbf{k}} = E_g + k^2/2m$ die Energie eines unkorrelierten Elektron-Loch-Paares ist. Die asymptotische Form (9.83a) der Coulomb-Greensfunktion wird noch gelegentlich benötigt. Im Augenblick genügt stattdessen sogar die Näherung

$$G(\mathbf{k}, \omega_p) \rightarrow \frac{1}{\omega_1 - \omega_p} \quad (9.83b)$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0.$$

Die Selbstenergie (9.82) geht in diesem Grenzfall über in

$$\Pi_{nn'} \rightarrow \delta_{nn'} \frac{2|\mu E_p|^2}{\omega_1 - \omega_p} \quad (9.84)$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0.$$

Für große Verstimmung liefert der Beitrag Π demnach eine starre Verschiebung des Exzitonspektrums. Der Ausdruck (9.84) entspricht der Formel (9.39b) für die Stark-Verschiebung im Zweiniveau-Modell. Im folgenden sollen die Stark-Verschiebungen auf diesen Wert skaliert werden gemäß

$$\Pi_{nn}(\omega_p) = \rho_n(\omega_p) \frac{2|\mu E_p|^2}{\omega_1 - \omega_p}. \quad (9.85)$$

Der Koeffizient ρ_n gibt die Überhöhung der Stark-Verschiebung aufgrund der Elektron-Loch-Korrelation an [20].

Nun soll der entgegengesetzte Grenzfall kleiner Verstimmung $\omega_1 - \omega_p$ untersucht werden. Dabei ist allerdings zu bedenken, daß die Theorie der virtuellen Elektron-Loch-Paare physikalisch unrichtig wird, sobald die Laserfrequenz in den Bereich der Absorptionslinie des Exzitons gelangt, denn dann erfolgt die Erzeugung reeller Elektron-Loch-Paare. Der Grenzfall $\omega_p \rightarrow \omega_1$ dient hier und im folgenden nur als rechnerischer Grenzfall zur Absicherung der numerischen Ergebnisse. Für $\omega_p \rightarrow \omega_1$ dominiert in der Coulomb-Greensfunktion (3.57) der 1s-Beitrag:

$$G(k, \omega_p) \rightarrow \frac{\phi_{1k} \phi_1^*(r=0)}{\omega_1 - \omega_p} \quad (9.86)$$

$$\text{für } \omega_p \rightarrow \omega_1.$$

Da die Energieverschiebung Π_{nn} also für $\omega_p \rightarrow \omega_1$ wie $(\omega_1 - \omega_p)^{-1}$ divergiert, muß in diesem Fall, um die Gültigkeit der Störungstheorie aufrechtzuerhalten, die Intensität $|E_p|^2$ entsprechend reduziert werden. Der Kleinheitsparameter der Störungsrechnung ist aufgrund der Näherung (9.66) die Größe $|\mu E_p|/(\omega_1 - \omega_p)$. Für kleine Verstimmung ergibt sich nach (9.86) für die Koeffizienten ρ_n aus Gleichung (9.85)

$$\rho_1(\omega_1) = \phi_1^*(r=0) \sum_{\mathbf{k}} |\phi_{1k}|^2 \phi_{1k}, \quad (9.87)$$

$$\rho_{\infty}(\omega_1) = \phi_1^*(r=0) \phi_{1,k=0}. \quad (9.88)$$

Um Gleichung (9.88) zu erhalten, wurde noch die Beziehung (7.24) verwendet. Die

Auswertung der Ergebnisse soll für zwei- und für dreidimensionale Elektron-Loch-Paare erfolgen. Die 1s-Wellenfunktion ist gegeben durch

$$\begin{aligned}\phi_{1\mathbf{k}} &= \frac{\sqrt{2\pi}a_0}{\left[1 + (ka_0/2)^2\right]^{3/2}} \quad \text{in 2D} \\ &= \frac{8\sqrt{\pi}a_0^3}{\left[1 + (ka_0)^2\right]^2} \quad \text{in 3D.}\end{aligned}\tag{9.89}$$

Mit diesen Funktionen erhält man für die Koeffizienten (9.87) und (9.88) die Ergebnisse

$$\rho_1(\omega_1) = \frac{16}{7} \quad \text{in 2D,}\tag{9.90}$$

$$= \frac{7}{2} \quad \text{in 3D,}$$

$$\rho_\infty(\omega_1) = 4 \quad \text{in 2D,}\tag{9.91}$$

$$= 8 \quad \text{in 3D.}$$

Die Werte (9.90) wurden auch in den Arbeiten [19, 20] angegeben. Der Verschiebung (9.91) der Bandkante jedoch wurde in diesen Arbeiten keine Beachtung geschenkt, denn zunächst wurde als selbstverständlich angenommen, daß das energetisch weiter von der Laserfrequenz ω_p entfernte Streukontinuum eine geringere Stark-Verschiebung aufweisen müsse als die Exzitonresonanz. Diese Vorstellung entstammt den Modellrechnungen zum optischen Stark-Effekt unkorrelierter Elektron-Loch-Paare und wird durch das Ergebnis (9.90-91) widerlegt. Das Ergebnis (9.90-91) für die anharmonische Exziton-Photon-Wechselwirkung bedeutet eine Zunahme der Exziton-Bindungsenergie. Es ist deshalb zu erwarten, daß der Beitrag der Selbstenergie Π zur optischen Oszillatorstärke $\tilde{f}_1$ der Exzitonresonanz, Glg. (9.80), positiv ist.

In Figur 9.4 ist der gesamte Verlauf der Koeffizienten ρ_1 und ρ_∞ für den 2D- und den 3D-Fall als Funktion der Verstimmung aufgetragen. Die Berechnung dieser Kurven erfolgte mit Hilfe der in der Arbeit [20] angegebenen Integralformeln für die Coulomb-Greensfunktion (3.57).

ii) Der Beitrag der Exziton-Exziton-Wechselwirkung zur Stark-Verschiebung

Der Beitrag der Exziton-Exziton-Wechselwirkung der virtuellen Elektron-Loch-Paare zur Stark-Verschiebung des Exzitonspektrums ist durch die Diagonalelemente der Größe $\Delta_{nn'}$, Glg. (9.72), gegeben. Um das asymptotische Verhalten dieses Ausdrucks als Funktion der Laserfrequenz anzugeben, seien analog zu den Koeffizienten ρ_n in Gleichung (9.85) Koeffizienten ν_n definiert durch

$$\Delta_{nn}(\omega_p) = \nu_n(\omega_p) \frac{2|\mu E_p|^2}{\omega_1 - \omega_p}. \quad (9.92)$$

Setzt man die asymptotische Näherung (9.83a) der Coulomb-Greensfunktion in Gleichung (9.69) ein, so ergibt sich nach einiger Rechnung für die Koeffizienten ν_n für große Verstimmung

$$\nu_n(\omega_p) \rightarrow a \sqrt{E_0/(\omega_1 - \omega_p)} \quad (9.93)$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0.$$

mit $a=\pi/2$ im 2D-Fall und $a=1$ in 3D. Auch die Exziton-Exziton-Wechselwirkung liefert also für große Verstimmung eine starre Verschiebung des Exzitonspektrums. Der Vergleich der Beziehungen (9.92-93) mit Gleichung (9.84) zeigt, daß für große Verstimmung der Beitrag II der Exziton-Photon-Wechselwirkung die Stark-Verschiebung dominiert. Für kleine Verstimmung dagegen dominiert, wie sich zeigen wird, die Exziton-Exziton-Wechselwirkung.

Den Grenzwert des Koeffizienten $\nu_n(\omega_p)$ für kleine Verstimmung erhält man wieder mit Hilfe der Beziehung (9.86). Man erkennt, daß $\nu_n(\omega_p)$ wie $(\omega_1 - \omega_p)^{-1}$ divergiert. Nach einiger Rechnung findet man

$$\nu_1(\omega_p) \frac{\omega_1 - \omega_p}{E_0} \rightarrow 64 \left(1 - \frac{315\pi^2}{2^{13}} \right) \approx 15.4 \quad \text{in 2D,} \quad (9.94)$$

$$\rightarrow \frac{26}{3} \quad \text{in 3D,}$$

$$\nu_\infty(\omega_p) \frac{\omega_1 - \omega_p}{E_0} \rightarrow 64 \left(1 - \frac{3\pi}{16} \right) \approx 26.3 \quad \text{in 2D,} \quad (9.95)$$

→ 24 in 3D

für $\omega_p \rightarrow \omega_1$.

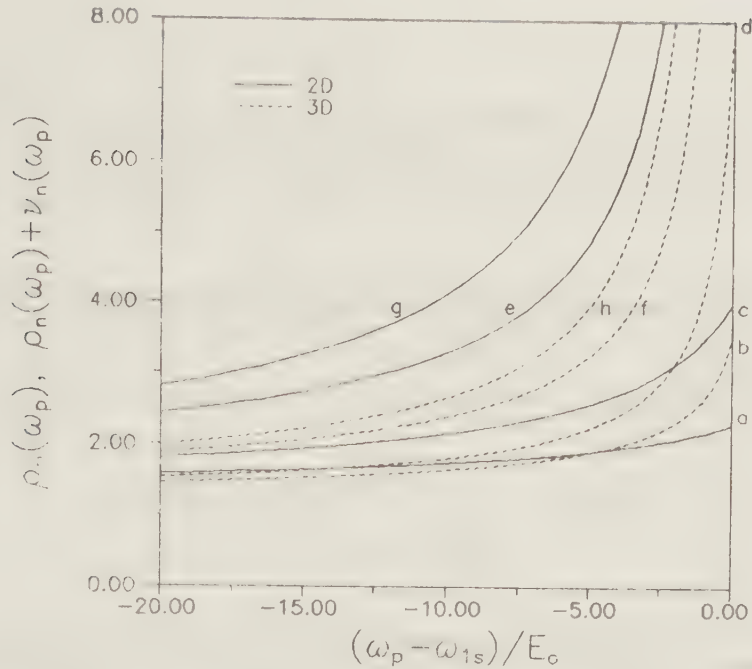
Die Beziehung (9.86) zeigt, daß sich im Grenzfall kleiner Verstimmung alle virtuellen Elektron-Loch-Paare im 1s-Zustand ansammeln. Aus diesem Grund treten die Koeffizienten (9.94-95) auch in der Theorie reeller entarteter Exzitonsysteme auf [88, 89, 90]. Man erkennt an den Ergebnissen (9.94) und (9.95), daß auch hier, wie im Fall der anharmonischen Exziton-Photon-Wechselwirkung, die Blauverschiebung des Streukontinuums größer ist als die der Exziton-Resonanz. Die Wechselwirkung der virtuellen Ladungsträgern mit dem Elektron-Loch-Paar, das vom Teststrahl erzeugt wird, ist größer, falls sich die Testteilchen in einem der räumlich ausgedehnten exzitonischen Streuzustände befinden [90].

Ein Elektron-Loch-Plasma verursacht eine Rotverschiebung der Bandkante (s. Abschnitt 7.4). Dagegen handelt es sich bei der hier berechneten Renormierung der Bandkante durch virtuelle Elektron-Loch-Paare um eine Blauverschiebung. Dieses Ergebnis überrascht zunächst, ist aber aus der Theorie reeller Exzitonsysteme durchaus bekannt. Um diese Blauverschiebung der Bandkante zu verstehen, sei nochmals die Selbstenergie $\Delta_{nn'}$, Glg. (9.72), betrachtet. Für $n=n' \rightarrow \infty$ tragen die Vertexkorrekturen (die Terme $\propto \phi_{nk}^* \phi_{nk}$) nicht bei (vgl. Glg. (7.25-27)). Für die Verschiebung der Bandkante verbleibt also

$$\Delta_{\infty} = 2 \sum_{\mathbf{k}} V_{\mathbf{k}} (p_{\mathbf{k}=0}^* - p_{\mathbf{k}}^*) p_{\mathbf{k}}. \quad (9.96)$$

Der zweite Term in Gleichung (9.96) ist nach Gleichung (9.66) gerade die gewöhnliche Hartree-Fock-Rotverschiebung der Bandkante. In Gleichung (9.96) wird diese Rotverschiebung aber durch die Blauverschiebung überkompensiert, die der erste Term verursacht. Dieser Term ist der Boson-Austausch-Beitrag zur Hartree-Fock-Wechselwirkung der Elektron-Loch-Paare, wie er auch in der Theorie von Systemen reeller Exzitonen auftritt [88]. Die Hartree-Fock-Wechselwirkung von Paaren von Elektron-Loch-Paaren ist eine abstoßende effektive Wechselwirkung, die vom Pauli-Prinzip hervorgerufen wird. Es ist bekannt, daß hieraus eine Blauverschiebung der Bandkante und eine Zunahme der Exzitonbindungsenergie resultiert. In Systemen reeller Ladungsträger sind aber, im Gegensatz zum vorliegenden Fall, in der Regel die Korrelationsbeiträge zur Selbstenergie wichtig, die die Blauverschiebung der Bandkante in eine Rotverschiebung umkehren, wie sie auch durch ein Elektron-Loch-Plasma hervorgerufen wird.

Der vollständige Verlauf der Koeffizienten ν_n als Funktion der Laserfrequenz wurde numerisch berechnet. In Figur 9.4 ist neben den Koeffizienten $\rho_n(\omega_p)$ das Gesamtergebnis $\rho_n(\omega_p) + \nu_n(\omega_p)$ aufgetragen.



Figur 9.4. Der Verlauf der Koeffizienten ρ_n und $\rho_n + \nu_n$ der Stark-Verschiebung der Exzitonresonanz als Funktion der Verstimmung. a,b) ρ_1 , c,d) ρ_∞ , e,f) $\rho_1 + \nu_1$, g,h) $\rho_\infty + \nu_\infty$.

Da sowohl der Beitrag (9.85) der anharmonischen Exziton-Photon-Wechselwirkung als auch der Beitrag (9.92) der Exziton-Exziton-Wechselwirkung eine Zunahme der Exziton-Bindungsenergie bewirken, ist es möglich, daß die optische Oszillatorstärke der Exzitonresonanz trotz ihrer Verminderung durch die Auffüllung des Fermionzustandsraumes mit der Intensität des Pumpstrahles zunimmt. Um festzustellen, ob und unter welchen Umständen dies der Fall ist, muß nun die Formel (9.80) für die renormierte Oszillatorstärke untersucht werden.

9.2.5 Die Änderung der optischen Oszillatorstärke der Exzitonresonanz

Nach Gleichung (9.80) setzt sich die Änderung $\Delta f_1 = \tilde{f}_1 - f_1$ der optischen Oszillatorstärke der Exzitonresonanz zusammen aus den Beiträgen der Phasenraumfüllung (PSF), der anharmonischen Exziton-Photon-Wechselwirkung (II) und der Exziton-Exziton-Wechselwirkung (Δ). Im Einzelnen sind diese Beiträge gegeben durch

$$\Delta f_1^{\text{PSF}} = - 2\mu_1^* \sum_{\mathbf{k}} \phi_{1\mathbf{k}}^* |\rho_{\mathbf{k}}|^2 \mu_{\mathbf{k}}, \quad (9.97)$$

$$\Delta f_1^{\Pi} = - \sum_{n, n \neq 1} \frac{\mu_1^* \Pi_{1n} \mu_n + \mu_n^* \Pi_{n1} \mu_1}{\omega_n - \omega_1}, \quad (9.98)$$

$$\Delta f_1^{\Delta} = - \sum_{n, n \neq 1} \frac{\mu_1^* \Delta_{1n} \mu_n + \mu_n^* \Delta_{n1} \mu_1}{\omega_n - \omega_1}. \quad (9.99)$$

Während der Beitrag (9.97) der Phasenraumfüllung eindeutig negativ ist, läßt sich über das Vorzeichen der beiden anderen Terme nicht sofort etwas aussagen. Begonnen sei mit der Auswertung von Gleichung (9.97).

i) Der Beitrag der Phasenraumfüllung zur optischen Oszillatorstärke der Exzitonresonanz

Für große Verstimmung $\omega_1 - \omega_p$ folgt mit dem Ausdruck (9.83b) für die Größe (9.97)

$$\Delta f_1^{\text{PSF}}(\omega_p) = - \frac{2|\mu E_p|^2}{(\omega_1 - \omega_p)^2} f_1 \quad (9.100)$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0.$$

Dieser Grenzfall entspricht wieder dem Ergebnis, das man im Zweiniveau-Modell erhält (vgl. Glg. (9.38)). Um die Abweichung von diesem Verhalten zu messen, sei ein Koeffizient F_1^{PSF} definiert durch

$$\Delta f_1^{\text{PSF}}(\omega_p) = F_1^{\text{PSF}}(\omega_p) \frac{2|\mu E_p|^2}{(\omega_1 - \omega_p)^2} f_1. \quad (9.101)$$

Der Grenzwert der Größe F_1^{PSF} für $\omega_p \rightarrow \omega_1$ ergibt sich mit der Beziehung (9.86) zu

$$F_1^{\text{PSF}}(\omega_1) = - \rho_1(\omega_1) \quad (9.102)$$

mit $\rho_1(\omega_1)$ aus Gleichung (9.87). Der numerisch berechnete vollständige Verlauf der Größe F_1^{PSF} als Funktion der Laserfrequenz ist in Figur 9.5 zu sehen. Auch für endliche Werte der Verstimmung besteht kein großer Unterschied zwischen dem Koeffizienten $F_1^{\text{PSF}}(\omega_p)$ und der Funktion $-\rho_1(\omega_p)$ (vgl. Figur 9.4).

ii) Der Beitrag der Exziton-Photon-Wechselwirkung zur optischen Oszillatorstärke der Exzitonresonanz

Mit Hilfe der Coulomb-Greensfunktion (3.57) und der sogenannten reduzierten Coulomb-Greensfunktion

$$G'(\mathbf{k}) = \sum_{n, n \neq 1} \frac{\phi_{n\mathbf{k}} \phi_n^*(\mathbf{r}=0)}{\omega_n - \omega_1} \quad (9.103)$$

[70] läßt sich der Beitrag der Exziton-Photon-Wechselwirkung zur optischen Oszillatorstärke, Glg. (9.98), schreiben als

$$\Delta f_1^{\text{II}} = -4 |\mu E_p|^2 |\mu|^2 \phi_1(\mathbf{r}=0) \sum_{\mathbf{k}} \phi_{1\mathbf{k}}^* G(\mathbf{k}, \omega_p) G'(\mathbf{k}). \quad (9.104)$$

Um das asymptotische Verhalten dieses Ausdrucks für große Verstimmung zu erhalten, ist der Ausdruck (9.83a) in Gleichung (9.104) einzusetzen. Es gilt

$$\sum_{\mathbf{k}} \phi_{1\mathbf{k}}^* G(\mathbf{k}, \omega_p) G'(\mathbf{k}) \simeq \frac{1}{\omega_1 - \omega_p} \sum_{\mathbf{k}} \phi_{1\mathbf{k}}^* \left(1 - \frac{k^2/2m}{\omega_1 - \omega_p} \right) G'(\mathbf{k}) \quad (9.105)$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0.$$

Aus der Definition der reduzierten Coulomb-Greensfunktion (9.103) ist ersichtlich, daß der erste Term ($\propto 1$) in Gleichung (9.105) wegen der Orthogonalität der Exzitonwellenfunktionen verschwindet. Für den zweiten Beitrag erhält man nach einiger Rechnung

$$\sum_{\mathbf{k}} \phi_{1\mathbf{k}}^* \frac{k^2}{2m} G'(\mathbf{k}) = \phi_1^*(r=0) \quad \text{in 2D,} \quad (9.106)$$

$$= \frac{3}{2} \phi_1^*(r=0) \quad \text{in 3D.}$$

Analog zu Gleichung (9.101) sei nun ein Koeffizient F_1^Π definiert durch

$$\Delta f_1^\Pi(\omega_p) = F_1^\Pi(\omega_p) \frac{2|\mu E_p|^2}{(\omega_1 - \omega_p)^2} f_1. \quad (9.107)$$

Aus Gleichung (9.106) folgt dann

$$F_1^\Pi(\omega_p) = 2 \quad \text{in 2D,} \quad (9.108)$$

$$= 3 \quad \text{in 3D}$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0.$$

Das Ergebnis (9.107-108) zeigt, daß im Grenzfall großer Verstimmung die Reduktion der Oszillatorstärke durch die Phasenraumfüllung, Glg. (9.100), tatsächlich durch den positiven Beitrag (9.107) überkompensiert wird. Es stellt sich also für große Verstimmung nicht das Verhalten des Zweiniveau-Modells ein.

Für kleine Verstimmung verschwindet der Koeffizient F_1^Π linear mit der Verstimmung $\omega_1 - \omega_p$. In diesem Grenzfall dominiert also der negative Beitrag (9.102) der Phasenraumfüllung über den positiven Beitrag F_1^Π . Nach langer Rechnung erhält man

$$F_1^\Pi(\omega_p) \frac{\omega_1 - \omega_p}{E_0} = \frac{4}{7} \ln 2 - \frac{169}{1470} \simeq 0.28 \quad \text{in 2D,} \quad (9.109)$$

$$= \frac{10}{3} \quad \text{in 3D}$$

$$\text{für } \omega_p \rightarrow \omega_1.$$

Der numerisch berechnete vollständige Verlauf der Größe F_1^{Π} als Funktion der Laserfrequenz ist in Figur 9.5 zu sehen.

iii) Der Beitrag der Exziton-Exziton-Wechselwirkung zur optischen Oszillatorstärke der Exzitonresonanz

Der Beitrag der Exziton-Exziton-Wechselwirkung zur optischen Oszillatorstärke, Glg. (9.99), läßt sich mit Hilfe der Coulomb-Greensfunktion (3.57) und der reduzierten Coulomb-Greensfunktion (9.103) schreiben als

$$\Delta f_1^{\Delta} = 2|\mu E_p|^2 |\mu|^2 \phi_1^*(r=0) \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} G'(\mathbf{k}') (G(\mathbf{k}, \omega_p) - G(\mathbf{k}', \omega_p)) \quad (9.110)$$

$$\times [2G(\mathbf{k}, \omega_p) \phi_{1\mathbf{k}'} - \phi_{1\mathbf{k}} (G(\mathbf{k}, \omega_p) - G(\mathbf{k}', \omega_p))].$$

Analog zu den Größen F_1^{PSF} und F_1^{Π} in den Gleichungen (9.101) und (9.107) sei nun ein Koeffizient F_1^{Δ} definiert durch

$$\Delta f_1^{\Delta}(\omega_p) = F_1^{\Delta}(\omega_p) \frac{2|\mu E_p|^2}{(\omega_1 - \omega_p)^2} f_1. \quad (9.111)$$

Für große Verstimmung dominiert nach (9.83a) der erste Term in der eckigen Klammer von Gleichung (9.110). Die Größe F_1^{Δ} reduziert sich dann zu

$$F_1^{\Delta}(\omega_p) \rightarrow \phi_1^{-1}(r=0) \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} G'(\mathbf{k}') \quad (9.112)$$

$$\times \left(\frac{\omega_1 - \omega_p}{\omega_1 - \omega_p + k^2/2m} - \frac{\omega_1 - \omega_p}{\omega_1 - \omega_p + k'^2/2m} \right) \frac{2\phi_{1\mathbf{k}'} (\omega_1 - \omega_p)}{\omega_1 - \omega_p + k^2/2m}$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0.$$

Im letzten Faktor in (9.112) kann der Term $k^2/2m$ nicht als klein gegen die Verstimmung

$\omega_1 - \omega_p$ angesehen werden, da er die Konvergenz der k -Integration sichert. Für die Ausdrücke in der Klammer ist dies jedoch möglich, und deshalb gilt

$$F_1^\Delta(\omega_p) \rightarrow 0 \quad (9.113)$$

$$\text{für } \omega_1 - \omega_p \gg E_0.$$

Für große Verstimmung ist die exzitonische Oszillatorstärke folglich allein durch die Beiträge der Phasenraumfüllung und der anharmonischen Exziton-Photon-Wechselwirkung bestimmt.

Den Grenzwert des Koeffizienten F_1^Δ für kleine Verstimmung konnte ich nicht analytisch bestimmen. Numerisch erhielt ich die Werte

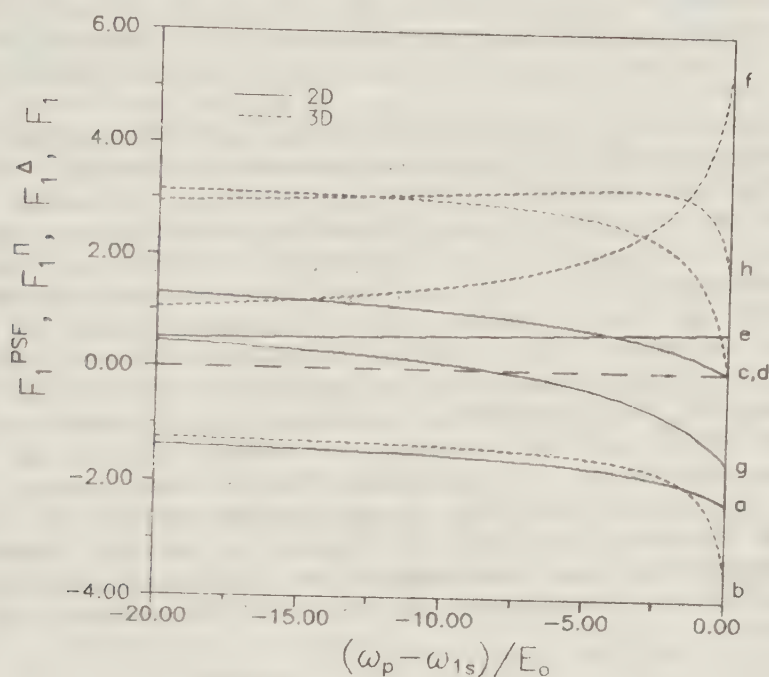
$$F_1^\Delta(\omega_1) \simeq 0.71 \quad \text{in 2D,} \quad (9.114)$$

$$F_1^\Delta(\omega_1) \simeq 5.39 \quad \text{in 3D.}$$

Diese Werte sind zu vergleichen mit dem Ergebnis (9.102) für den Beitrag der Phasenraumfüllung. Für den 2D-Fall ergibt sich für kleine Verstimmung insgesamt eine Abnahme der Oszillatorstärke. Da die Oszillatorstärke, wie oben festgestellt (s. Glg. (9.108)), für große Verstimmung zunimmt, existiert im 2D-Fall demnach bei einer bestimmten Frequenz ein Nulldurchgang. Im 3D-Fall dagegen nimmt die Oszillatorstärke nach Gleichung (9.102) und Gleichung (9.114) auch für kleine Verstimmung zu. Figur 9.5 zeigt den numerisch berechneten Verlauf der Koeffizienten F_1^{PSF} , F_1^Π und F_1^Δ als Funktion der Verstimmung $\omega_1 - \omega_p$. Ebenfalls eingezeichnet ist die Summe der drei Beiträge. Im 3D-Fall ergibt sich für alle Werte der Verstimmung eine Zunahme der Oszillatorstärke. Im 2D-Fall findet man eine vergleichsweise schwache Veränderung der Oszillatorstärke und eine leichte Abnahme für kleine Werte der Verstimmung. Der Nulldurchgang der 2D-Kurve liegt bei etwa $\omega_1 - \omega_p \simeq 8.3E_0$. Die von C. Ell durchgeführte numerische Lösung der nichtlinearen Integralgleichungen (9.58-60) zeigt darüber hinaus, daß auch die Abnahme der Oszillatorstärke, die im 2D-Fall für kleine Verstimmungen auftritt, für höhere Laserintensitäten in eine Zunahme übergeht. Diese Zunahme setzt sich mit weiterer Erhöhung der Laserintensität fort, ohne daß eine Sättigung eintritt. Auch die Stark-Verschiebung der Exzitonresonanz läuft im Rahmen der stationären Hartree-Fock-Theorie nicht in eine Sättigung.

In den Experimenten zum exzitonischen optischen Stark-Effekt ist die Blauverschiebung der Exzitonlinie von einer deutlichen Abnahme des Absorptionsmaximums begleitet. Weiterhin beobachtete man mit zunehmender Laserintensität ein Sättigungsverhalten der Stark-Verschiebung [24, 25, 26]. Da dieses Verhalten dem quasistationären optischen Stark-Effekt im Zweiniveau-Modell ähnelt (s. Figur 9.3), interpretierte man die Beobachtungen zunächst in diesem einfachen Bild, obwohl die Messungen mit den neu verfügbaren ultrakurzen Femtosekunden-Laserpulsen durchgeführt worden waren. Unsere Berechnungen zeigten jedoch, daß sich der exzitonische optische Stark-Effekt sehr vom

atomaren optischen Stark-Effekt unterscheidet und ein ganz anderes Verhalten erwarten läßt. Das ließ, sofern die in Abschnitt 9.2.1 diskutierten Argumente für die Anwendbarkeit der einfachen Hartree-Fock-Approximation zutreffen, nur den Schluß zu, daß in den Messungen die Zeitabhängigkeit der Laserintensität eine große Rolle spielte, und daß die Beobachtungen möglicherweise völlig anders gedeutet werden müssen, als dies bis dahin geschehen war.



Figur 9.5. Der Verlauf der Koeffizienten F_1^{PSF} , F_1^{Π} und F_1^{Δ} der Renormierung der optischen Oszillatorstärke der Exzitonresonanz als Funktion der Verstimmung. a, b) F_1^{PSF} , c, d) F_1^{Π} , e, f) F_1^{Δ} . Die Kurven g) und h) zeigen das Gesamtergebnis $F_1 = F_1^{PSF} + F_1^{\Pi} + F_1^{\Delta}$.

9.3 Der nichtstationäre optische Stark-Effekt

In diesem Abschnitt werde ich diskutieren, in welcher Weise sich beim optischen Stark-Effekt die Zeitabhängigkeit der Intensität des Pumpstrahles auf die optischen Spektren auswirkt. Dabei werde ich im wesentlichen der Argumentation meines Kollegen L. Banyai folgen. Als ein günstiger Umstand erweist sich, daß nach der Theorie von L. Banyai die im vorangegangenen Abschnitt berechneten Ergebnisse zum quasistationären exzitonischen Stark-Effekt im Rahmen einer gewissen Näherung auch in der zeitabhängigen Theorie Verwendung finden können.

In Abschnitt 9.1.4 wurde gezeigt, daß für hinreichend große Verstimmung der Frequenz des Pumpstrahles gegen die Resonanzfrequenz des optischen Übergangs eine adiabatische Elimination der vom Pumpstrahl herrührenden Polarisation verwendbar ist. In dieser Näherung sind die Besetzungszahlen und die optische Polarisation durch die Beziehungen (9.25) und (9.26) bzw. durch (9.57) und (9.58) gegeben. Allerdings sind diese Größen nun durch ihre Abhängigkeit von der Laseramplitude $E_p(t)$ parametrisch zeitabhängig.

Zur Berechnung der linearen Reaktion des zeitabhängigen Systems auf ein zusätzlich eingeschaltetes Testfeld kann wieder von den Gleichungen (9.59) und (9.60) ausgegangen werden. Zur Lösung dieser Gleichungen dient auch hier der Ansatz (9.62), allerdings sind die Amplituden $\delta p_{k,+}$ nun zeitabhängig anzusetzen. Ferner erweist es sich in der zeitabhängigen Theorie auch als notwendig, den zeitlichen Verlauf des Testpulses zu berücksichtigen, während es in der stationären Theorie immer genügte, lediglich die Reaktion des Systems auf jeweils eine einzige Fourierkomponente des Teststrahles zu berechnen. Im folgenden sei deshalb die Frequenz ω_t als die Trägerfrequenz des Teststrahles angesehen und eine Zeitabhängigkeit der Amplitude E_t zugelassen. In linearer Näherung bezüglich der Pumpintensität gilt dann in Verallgemeinerung von Gleichung (9.67)

$$i\delta\dot{p}_{k,+}(t) = - (1 - 2n_k(t)) \mu_k E_t(t) \quad (9.115)$$

$$+ \sum_{k'} [H_{kk'} + \Delta H_{kk'}(t) - (\omega_t + i\delta) \delta_{kk'}] \delta p_{k',+}(t).$$

Im Exzitonbild wird diese Gleichung zu

$$i\delta\dot{p}_{k,+}(t) = - \sum_k \phi_{k,+}^* (1 - 2n_k(t)) \mu_k E_t(t) \quad (9.116)$$

$$+ \sum_{n'} [(\omega_n - \omega_t - i\delta) \delta_{nn'} + \Delta H_{nn'}(t)] \delta p'_{n',+}(t).$$

Zu einer näherungsweisen Lösung dieses zeitabhängigen Gleichungssystems kann man, wie in Abschnitt 9.2.3, Glg. (9.73-79), iterativ gelangen. Dazu sind allerdings umfangreiche Berechnungen erforderlich. An dieser Stelle sollen aber lediglich die Tendenzen aufgezeigt werden, die sich aus der Zeitabhängigkeit der Laserintensität ergeben. Aus diesem Grund setze ich die Diskussion hier stark vereinfachend mit Hilfe eines modifizierten Zweiniveau-Modells fort. Anstelle der Gleichung (9.116) sei die entsprechende Gleichung des Zweiniveau-Systems betrachtet (vgl. Glg. (9.35)):

$$i\delta\dot{p}'_+(t) = [\epsilon + \Delta\epsilon(t) - \omega_t - i\gamma] \delta p'_+(t) - \delta Q'(t). \quad (9.117)$$

Hierin ist $\Delta\epsilon(t)$ die lineare Stark-Verschiebung (9.39), und der Quellterm $\delta Q'(t)$ ist gegeben durch

$$\delta Q'(t) = (1 - 2n(t)) \mu E'_t(t). \quad (9.118)$$

Ferner wurde in Gleichung (9.117) eine endliche Dämpfungskonstante $\gamma > 0$ eingeführt, da für die folgende Argumentation die Relaxationszeit der optischen Polarisation eine wichtige Rolle spielt. Der Quellterm (9.118) enthält den Faktor $(1-2n)$, der im Zweiniveaumodell die Verminderung der optischen Oszillatorstärke verursacht. Zu einem vereinfachten Modell des exzitonischen Stark-Effektes kann man nun gelangen, indem man in Gleichung (9.117) für die Stark-Verschiebung und für die Oszillatorstärke die Ergebnisse aus den Abschnitten 9.2.4 und 9.2.5 einsetzt. An die Stelle des Ausdrucks (9.118) tritt dann die Größe

$$\delta Q'(t) \rightarrow \frac{\tilde{f}_1(t)}{f_1} \mu_1 E'_t(t), \quad (9.118)$$

worin $\tilde{f}_1$ und f_1 die renormierte bzw. die ungestörte exzitonische Oszillatorstärke aus Gleichung (9.80) sind. Im einfachsten Fall kann $\tilde{f}_1(t) \simeq f_1$ gesetzt werden, wie dies näherungsweise für den Stark-Effekt an quasizweidimensionalen Elektron-Loch-Paaren gilt.

i) Langsam veränderliches Pumpfeld: der zeitaufgelöste optische Stark-Effekt

Im Falle eines langsam veränderlichen Systems kann neben der vom Pumpstrahl

herrührenden optischen Polarisation p auch die Auslenkung δp_+ adiabatisch eliminiert werden, indem in Gleichung (9.117) die Zeitableitung $\delta \dot{p}_+$ gegenüber dem Dämpfungsterm vernachlässigt wird (vgl. (7.5) und (9.24)). Als langsam veränderlich kann das System in diesem Zusammenhang gelten, sofern die Relaxationszeit γ^{-1} bedeutend kleiner ist als die Pulsdauer $\tau = \Delta\omega^{-1}$ des Pumpimpulses. In diesem einfachen Fall erhält man für die optische Suszeptibilität das Ergebnis (9.38) der quasistationären Theorie,

$$\chi_t(t, \omega_t) \simeq 2 \frac{\bar{f}_1(t)}{\epsilon + \Delta\epsilon_1(t) - \omega_t - i\gamma}, \quad (9.119)$$

mit einem Faktor 2 für die Spinentartung. Diese Näherung entspricht einer sogenannten Trennung der Zeitskalen [58, §25]: im vorliegenden Fall handelt es sich um eine Trennung der Zeitskala der optischen Polarisation δp_+ , die durch die Relaxationszeit γ^{-1} festgelegt ist, und der größeren Zeitskala $\Delta\omega^{-1}$, auf der die Veränderungen des Systems stattfinden.

ii) Rasch veränderliches Pumpfeld: der integrale optische Stark-Effekt

Die einfache Form (9.119), die Zeitabhängigkeit des Systems zu berücksichtigen, wird unrichtig, sobald sich die Größen $n(t)$ und $p(t)$ rascher verändern, als die optische Polarisation δp_+ relaxieren kann. In diesem Fall gehen in die optische Suszeptibilität χ_t nicht mehr nur die Eigenschaften des Systems, d.h. die Werte $\Delta\epsilon_1(t)$ und $\bar{f}_1(t)$, zu einer einzelnen Zeit t ein, sondern es findet eine Mittelung über einen relativ großen Zeitraum statt. Das bedeutet, daß sich die rasche zeitliche Entwicklung des Systems spektroskopisch nicht mehr auflösen läßt. Hieraus resultieren nach unserer Ansicht die Diskrepanzen zwischen den Ergebnissen der quasistationären Hartree-Fock-Theorie und den experimentellen Spektren.

Durch Integration der Bewegungsgleichung (9.117) erhält man für die optische Polarisation die Formel

$$\delta P(t) = 2\mu_1^* \delta p_+(t) = \int dt' \chi_t(tt') E_t(t'). \quad (9.120)$$

Hierin ist die optische Suszeptibilität χ_t gegeben durch

$$\chi_t(tt') = 2i\theta(t - t') \bar{f}_1(t') \exp \left[-i \int_{t'}^t dt'' [\epsilon + \Delta\epsilon_1(t'') - i\gamma] \right]. \quad (9.121)$$

Der Ausdruck (9.121) für die optische Suszeptibilität hängt, da das System zeitabhängig ist, nicht nur von der Differenz $t-t'$, sondern von allen Zeiten $t < t'' < t'$ ab. Auf diese Weise resultieren optische Spektren, in die sowohl der zeitliche Verlauf des Pumpulses als auch der zeitliche Verlauf des Testpulses eingehen. Insbesondere stellt man durch Fouriertransformation der Gleichung (9.120) fest, daß nun zu einer bestimmten Fourierkomponente $\delta p_+(\omega)$ der optischen Polarisation nicht mehr nur die eine Fourierkomponente $E_t(\omega)$ des Testfeldes beiträgt, wie dies im stationären System der Fall ist. Man gelangt hier also nicht zu der eindeutigen Beziehung $\delta P(\omega) = \chi_t(\omega) E_t(\omega)$. Das bedeutet, daß auch die Beziehung zwischen der optischen Polarisation und dem transmittierten Lichtfeld neu formuliert werden muß [91]. Zu einer verhältnismäßig einfachen Formel für die optische Polarisation gelangt man, indem man die Reaktion des Systems auf einen extrem kurzen Testpuls

$$E_t(t) \simeq E_t(\omega_t) \delta(t) \quad (9.123)$$

berechnet [92]. Aus Gleichung (9.120) folgt dann

$$\mu_1^* \delta p_+(\omega) = E_t(\omega_t) \tilde{f}_1(t=0) i \int_0^\infty dt e^{i\omega t} \exp \left[-i \int_0^t dt'' [\epsilon + \Delta\epsilon_1(t'') - i\gamma] \right]. \quad (9.123)$$

Für ein nicht zu rasch veränderliches System kann in dem Ausdruck (9.123) die Stark-Verschiebung $\Delta\epsilon_1(t'')$ durch ihren Wert an der oberen Grenze des t'' -Integrals genähert werden. Dies liefert

$$\mu_1^* \delta p_+(\omega) \simeq E_t(\omega_t) \tilde{f}_1(t=0) i \int_0^\infty dt e^{i[\omega - \epsilon - \Delta\epsilon_1(t) + i\gamma]t}. \quad (9.124)$$

In einer ähnlichen Form wurde die optische Polarisation von L. Banyai angegeben. Für die Auswertung dieser Formel verwendete er das Ergebnis für die Stark-Verschiebung, das sich aus der numerischen Lösung des quasistationären Problems ergeben hatte. Die wichtigsten Ergebnisse seiner Untersuchungen sind in unserer gemeinsamen Arbeit [93] erschienen.

Eine wichtige Rolle spielt in Gleichung (9.124) die Zeitverzögerung zwischen Testpuls und Pumpuls. Einen nennenswerten nichtlinearen Effekt kann man nach Gleichung (9.124) nur finden, sofern der Pumpuls später als der Testpuls eintrifft. Ebenfalls wichtig ist das Verhältnis der Dauer des Pumpulses zur Relaxationszeit γ^{-1} . Ist die Dauer des Pumpulses groß gegen die Relaxationszeit γ^{-1} , so ist die Stark-Verschiebung $\Delta\epsilon_1(t)$ nahezu konstant über den relevanten Bereich der t -Integration, und man erhält näherungsweise das quasistationäre Ergebnis (9.119) zurück. Wird dagegen die Dauer des

Pumpulses vergleichbar mit der Relaxationszeit γ^{-1} oder kleiner als diese, so beginnt sich die Dynamik des Systems bemerkbar zu machen. Für die effektive Stark-Verschiebung resultiert dann ein über die momentanen Werte $\Delta\epsilon_1(t)$ gemittelter Wert. Das wichtigste Resultat dieser Berechnungen ist, daß sich im zeitabhängigen exzitonischen Stark-Effekt tatsächlich, in Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen, eine Sättigung des spektralen Maximums ergibt, auch wenn die momentane exzitonische Oszillatorstärke $\tilde{f}_1(t)$ konstant bleibt oder leicht mit der Laserintensität zunimmt. Die Dynamik, die dem System durch den Pumpstrahl aufgeprägt wird, ruft eine spektrale Verbreiterung und Abflachung der optischen Resonanzen hervor. Bei der beobachteten Sättigung des spektralen Maximums handelt es sich demnach, entgegen der anfänglichen Interpretation, gar nicht um eine Verminderung der exzitonischen Oszillatorstärke.

Die vorangegangene Diskussion hat gezeigt, daß sich unsere Ergebnisse für den quasistationären (zeitaufgelösten) exzitonischen Stark-Effekt nicht im Widerspruch zu den experimentellen Ergebnissen befinden, und daß sie sogar zur näherungsweise Berechnung des nichtstationären (integralen) optischen Stark-Effektes verwendbar sind. Andererseits wurde erkennbar, daß eine sichere experimentelle Bestätigung der Hartree-Fock-Theorie nur durch die Messung des quasistationären exzitonischen optischen Stark-Effektes erfolgen könnte.

Im quasistationären Regime befindet man sich nach Gleichung (9.124), falls die Dauer des Pumpulses groß ist gegen die Relaxationszeit der exzitonischen Polarisation. Einer Linienbreite der Exzitonresonanz von beispielsweise $\gamma=0.25\text{meV}$ entspricht eine Relaxationszeit von etwa $2.6 \times 10^{-12}\text{s}$. Auf der Pikosekunden-Zeitskala verliert der dynamische Stark-Effekt einen Teil seiner Attraktivität im Hinblick auf mögliche technische Anwendungen. Dies ist vermutlich einer der Gründe dafür, weshalb bisher keine Messungen zum exzitonischen Stark-Effekt unter quasistationären Bedingungen publiziert wurden. Aus theoretischer Sicht wäre dies aber sehr wünschenswert.

Im folgenden und letzten Kapitel dieser Arbeit werde ich zeigen, daß die Hartree-Fock-Theorie virtueller Elektron-Loch-Paare ihre Gültigkeit auch im quasistationären Regime behält. Damit will ich meine Ansicht theoretisch begründen, daß der reine exzitonische Stark-Effekt, so wie er in Abschnitt 9.2 berechnet wurde, tatsächlich meßbar sein könnte. Insbesondere werde ich zeigen, daß unter virtuellen Elektron-Loch-Paaren keine Streuprozesse stattfinden können. Ebenso ist keine Streuung eines vom Teststrahl erzeugten Exzitons an den virtuellen Elektron-Loch-Paaren möglich. Durch virtuelle Elektron-Loch-Paare wird demnach weder die vom Pumpstrahl verursachte optische Polarisation p , die den Stark-Effekt ausmacht, zerstört, noch wird die exzitonische Polarisation δp der Testteilchen durch die Wechselwirkung mit den virtuellen Ladungsträgern stark herabgesetzt. Falls es also möglich ist, ein System rein virtueller Ladungsträger zu erzeugen, so entfällt die Notwendigkeit, zur Beobachtung des exzitonischen Stark-Effektes extrem kurze Laserpulse zu verwenden.

10. KORRELATIONSEFFEKTE ZWISCHEN VIRTUELLEN LADUNGSTRÄGERN

In diesem Kapitel wird eine Theorie der Abschirmung in einem kohärent getriebenen, stationären System von Elektron-Loch-Paaren entwickelt und die Wirkung der Abschirmungsprozesse auf den exzitonischen optischen Stark-Effekt diskutiert. Diese Untersuchung dient der Rechtfertigung der einfachen Hartree-Fock-Approximation bei der bisherigen Behandlung des exzitonischen Stark-Effektes. Es wird gezeigt, daß virtuelle Elektron-Loch-Paare keiner reellen Streuungen fähig sind und lediglich eine schwache dielektrische Abschirmung bewirken. Hierdurch soll plausibel werden, daß der exzitonische optische Stark-Effekt auch im quasistationären Regime meßbar sein könnte, und zwar dann in seiner reinen Form gemäß Abschnitt 9.2. Voraussetzung ist dabei, daß die Erzeugung reeller Elektron-Loch-Paare weitgehend vermieden werden kann.

Im folgenden Abschnitt wird zunächst die longitudinale dielektrische Funktion eines Systems kohärent getriebener Elektron-Loch-Paare berechnet. Mit Hilfe dieser Funktion kann die Korrelationsselbstenergie der Ladungsträger im Rahmen der abgeschirmten Hartree-Fock-Approximation angegeben werden. Unter Verwendung der Dyson-Gleichung (8.5) für die optische Polarisierung gelangt man anschließend wieder zu einer modifizierten Wanniergleichung, in der nun neben den Hartree-Fock-Beiträgen (9.71-72) auch Korrelationsbeiträge zur Exzitonselfenergie auftreten. Schließlich stellt man fest, daß man, um zu einer vollständigen Theorie zu gelangen, noch über die abgeschirmte Hartree-Fock-Approximation hinausgehen muß, da diese Näherung, wie sich zeigt, nur die direkte Exziton-Exziton-Wechselwirkung, nicht aber die Exziton-Exziton-Wechselwirkung unter Fermionenaustausch liefert.

10.1 Abschirmung durch virtuelle Elektron-Loch-Paare

Wie in Abschnitt 6.1 geschildert, läßt sich die dielektrische Funktion eines Systems aus seiner linearen Reaktion auf eine externe Störung berechnen. Ein externes Potential ruft im System der Ladungsträger ein Gegenfeld hervor. Dieses Gegenfeld bewirkt, daß das externe Feld nicht mehr voll wirksam ist. Die dielektrische Funktion ist definiert als der Quotient der Fourierkomponenten des externen Potentials und des effektiv wirksamen Potentials. Dieselbe dielektrische Funktion beschreibt auch die Schwächung der Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander infolge ihrer gegenseitigen Abschirmung.

Die lineare Suszeptibilität eines Systems, das sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, ist durch die Kubo-Formel gegeben [47, Glg. (126,8)]. Diese Formel ist das Ergebnis der Berechnung der linearen Reaktion eines Gleichgewichtssystems auf eine orts- und zeitabhängige Störung. In die Kubo-Formel selbst gehen aber, da es sich um eine lineare Suszeptibilität handelt, nur Eigenschaften des räumlich homogenen und

stationären Gleichgewichtssystemen ein. Es wird bei Anwendung dieser Formel also nicht notwendig, räumliche Inhomogenität zu betrachten. Mit der Kubo-Formel läßt sich beispielsweise die Lindhard-Formel, Glg. (6.8), für die longitudinale dielektrische Funktion eines Elektron-Loch-Plasmas herleiten, ebenso aber auch die transversale Polarisierbarkeit (3.51).

Für Systeme, die sich nicht im thermodynamischen Gleichgewicht befinden, gibt es keine solche allgemeine Formel. In solchen Fällen muß die Berechnung der longitudinalen dielektrischen Funktion explizit durchgeführt werden. Das bedeutet, daß auch der Umgang mit einer räumlich inhomogenen Ladungsträgerverteilung erforderlich wird.

Sei $V_{0,\text{ext},q}(t)$ die räumliche Fourierkomponente des externen Potentials. Der Hamiltonoperator, der die Wechselwirkung der Ladungsträger mit diesem Potential beschreibt, ist im Rahmen der ϵ_0 -Approximation gegeben durch

$$H_{\text{ext}}(t) = \sum_{\rho s k q} a_{\rho k s}^+ a_{\rho, k-q, s} V_{\text{ext}, q}. \quad (10.1)$$

mit $V_{\text{ext}} = V_{0,\text{ext}}/\epsilon_0$. Hierbei wurde angenommen, daß Interbandprozesse, die durch das Potential V_{ext} bewirkt werden, nichtresonant und vernachlässigbar sind. Die Ortsabhängigkeit des externen Potentials, d.h. das Auftreten endlicher q -Werte in Gleichung (10.1), hat zur Folge, daß nun Erwartungswerte von Paaren von Fermioperatoren $\langle a_{\rho k s}^+ a_{\rho' k' s} \rangle$ zu unterschiedlichen Wellenvektoren $\mathbf{k}$ und $\mathbf{k}'$ auftreten (vgl. Glg. (3.22-24)). Es müssen nun also Gleichungen für Greensche Funktionen aufgestellt werden, die von zwei Wellenvektoren abhängen. Eine Erleichterung kann man sich dagegen bezüglich der Zeitargumente verschaffen. Zur Berechnung der dielektrischen Funktion auf einem Niveau, das der Lindhard-Formel (6.8) entspricht, genügt es, die Wechselwirkung der Ladungsträger im Rahmen der Hartree-Fock-Approximation zu behandeln. Es werden also lediglich die Greenschen Funktionen G^{+-} benötigt, und zwar zu gleichen Zeitargumenten.

Um zu einer sinnvollen Definition der Greenschen Funktionen für ein räumlich inhomogenes System zu gelangen, sei von der Wannierdarstellung (1.28) der Fermioperatoren ausgegangen. In der Ortsdarstellung seien die Greenschen Funktionen definiert durch

$$G_{\rho\nu}^{+-}(\mathbf{R}\mathbf{R}') = i\langle \Psi_{\nu}^+(\mathbf{R}') \Psi_{\rho}(\mathbf{R}) \rangle. \quad (10.2)$$

Ähnlich wie bezüglich der Zeitvariablen (vgl. Glg. (5.52)) definiert man nun eine Relativkoordinate $\mathbf{r}$ und eine Schwerpunktskoordinate $\boldsymbol{\rho}$ durch

$$\mathbf{r} = \mathbf{R} - \mathbf{R}', \quad (10.3)$$

$$\boldsymbol{\rho} = (\mathbf{R} + \mathbf{R}')/2.$$

Hierbei ist zu beachten, daß es sich bei dem Vektor ρ im Falle eines Elektron-Loch-Paares ($(\rho\nu)=(c\nu)$) nicht um den Massenschwerpunkt handelt. Dies muß später (s. Glg. (10.24)) korrigiert werden. Durch Fouriertransformation der Greenschen Funktion (10.2) bezüglich beider Variablen (10.3) erhält man

$$\begin{aligned} G_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{+-} &= \int d^d r \int d^d \rho e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\mathbf{q}\cdot\boldsymbol{\rho}} G_{\rho\nu}^{+-}(\mathbf{R}\mathbf{R}') \\ &= i \langle a_{\nu,\mathbf{k}-\mathbf{q}/2,s}^+ a_{\rho,\mathbf{k}+\mathbf{q}/2,s} \rangle \\ &=: i n_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}. \end{aligned} \quad (10.4)$$

Das externe Potential V_{ext} bewirkt eine Auslenkung $\delta n_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}$ der Größen $n_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}$ aus ihren Gleichgewichtslagen. Da das ungestörte System als räumlich homogen angenommen werden kann, läßt sich schreiben

$$n_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}} = \delta_{\mathbf{q},0} n_{\rho\nu\mathbf{k}} + \delta n_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}. \quad (10.5)$$

Eine Bewegungsgleichung für die Größen $\delta n_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}$ läßt sich aus der Ortsraumformulierung der Dyson-Gleichung herleiten [44]. Im Rahmen der Hartree-Fock-Approximation findet man in Verallgemeinerung von Gleichung (5.49) für ein räumlich inhomogenes System

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial t} G_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{+-} &= (\epsilon_{\rho,\mathbf{k}+\mathbf{q}/2} - \epsilon_{\nu,\mathbf{k}-\mathbf{q}/2}) G_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{+-} \\ &+ \sum_{\mu} [\Sigma_{\rho\mu}^{\text{HF}} G_{\mu\nu}^{+-} - G_{\rho\mu}^{+-} \Sigma_{\mu\nu}^{\text{HF}}]_{\mathbf{k}\mathbf{q}}. \end{aligned} \quad (10.6)$$

In dieser Gleichung wurde die Abkürzung

$$[fg]_{\mathbf{kq}} = \int d^d r \int d^d \rho e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\mathbf{q}\cdot\boldsymbol{\rho}} [fg](\mathbf{R}\mathbf{R}'), \quad (10.7)$$

$$[fg](\mathbf{R}\mathbf{R}') = \int d^d \mathbf{R}'' f(\mathbf{R}\mathbf{R}'') g(\mathbf{R}''\mathbf{R}') \quad (10.8)$$

verwendet. Für den Ausdruck (10.7) findet man

$$[fg]_{\mathbf{kq}} = \sum_{\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}', \mathbf{q}+2(\mathbf{k}-\mathbf{k}')} g_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}/2, 2(\mathbf{k}'-\mathbf{k})}. \quad (10.9)$$

Gilt $f_{\mathbf{kq}} = \delta_{\mathbf{q},0} f_{\mathbf{k}}$ und $h_{\mathbf{kq}} = \delta_{\mathbf{q},0} h_{\mathbf{k}}$, wie dies für die Größen Σ^{HF} und G^{+-} in einem räumlich homogenen System der Fall ist, so gelangt man mit Gleichung (10.9) zurück zu der einfachen Form $[fg]_{\mathbf{kq}} = \delta_{\mathbf{q},0} f_{\mathbf{k}} g_{\mathbf{k}}$ (vgl. Glg. (5.49)). Da hier lediglich eine Gleichung für die Auslenkungen $\delta n_{\rho\nu\mathbf{kq}}$ gesucht ist, soll eine Linearisierung der Beziehung (10.9) durchgeführt werden. Das Ergebnis ist

$$\delta[fg]_{\mathbf{kq}} = \delta f_{\mathbf{kq}} g_{\mathbf{k}-\mathbf{q}/2} + f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}/2} \delta g_{\mathbf{kq}}. \quad (10.10)$$

Durch Linearisierung von Gleichung (10.6) folgt damit

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial t} \delta n_{\rho\nu\mathbf{kq}} &= (\epsilon_{\rho, \mathbf{k}+\mathbf{q}/2} - \epsilon_{\nu, \mathbf{k}-\mathbf{q}/2}) \delta n_{\rho\nu\mathbf{kq}} \\ &+ \sum_{\mu} [\delta \Sigma_{\rho\mu\mathbf{kq}}^{\text{HF}} n_{\mu\nu, \mathbf{k}-\mathbf{q}/2} + \Sigma_{\rho\mu, \mathbf{k}+\mathbf{q}/2}^{\text{HF}} \delta n_{\mu\nu\mathbf{kq}}] \\ &- \sum_{\mu} [\delta n_{\rho\mu\mathbf{kq}} \Sigma_{\mu\nu, \mathbf{k}-\mathbf{q}/2}^{\text{HF}} + n_{\rho\mu, \mathbf{k}+\mathbf{q}/2} \delta \Sigma_{\mu\nu\mathbf{kq}}^{\text{HF}}]. \end{aligned} \quad (10.11)$$

Für die Hartree-Fock-Selbstenergie der Ladungsträger gilt analog zu Gleichung (10.5)

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{\text{HF}} = \delta_{\mathbf{q},0} \Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\text{HF}} + \delta\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{\text{HF}}. \quad (10.12)$$

Hierin ist $\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\text{HF}}$ die in Gleichung (5.48) definierte Hartree-Fock-Selbstenergie des ungestörten Systems (ohne die Erweiterung $\delta(tt')$), in die auch die Wechselwirkung der Ladungsträger mit dem Pumpstrahl ($E_0=E_p$) mit aufgenommen wurde. Die Auslenkung $\delta\Sigma^{\text{HF}}$ der Selbstenergie setzt sich zusammen aus dem Beitrag Σ^{ext} , der von der Wechselwirkung der Ladungsträger mit dem externen Potential V_{ext} stammt, und dem durch das externe Potential induzierten Hartree-Fock-Beitrag Σ^{ind} , der die abschirmende Reaktion der Ladungsträger wiedergibt:

$$\delta\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{\text{HF}} = \Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{\text{ext}} + \Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{\text{ind}}. \quad (10.13)$$

Die Selbstenergie Σ^{ext} ist gegeben durch

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{\text{ext}} = \delta_{\rho\nu} V_{\text{ext},\mathbf{q}}. \quad (10.14)$$

Für die induzierte Hartree-Fock-Selbstenergie findet man in Verallgemeinerung von Gleichung (3.28)

$$\Sigma_{\rho\nu\mathbf{k}\mathbf{q}}^{\text{ind}} = \delta_{\rho\nu} V_{\mathbf{q}} \sum_{\mu\mathbf{k}'\mathbf{s}'} \delta n_{\mu\mathbf{k}'\mathbf{q}} - \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \delta n_{\rho\nu\mathbf{k}'\mathbf{q}}. \quad (10.15)$$

Der erste Term in Gleichung (10.15) ist die Hartree-Selbstenergie. Dieser Term kommt durch die lokalen Abweichungen von der Ladungsneutralität zustande, die das externe Feld hervorruft. In einem solchen Fall, in dem ein Hartree-Term existiert, liefert er auch den wichtigsten Beitrag zur Selbstenergie. Die gegenseitige Abschirmung der Ladungsträger kommt gerade durch ihre Reaktion auf lokale Coulombfelder zustande. Der Hartree-Beitrag in Gleichung (10.15) stellt das induzierte Potential dar, das dem externen Potential entgegenwirkt. Zusammen bilden das externe Potential in Gleichung (10.14) und das induzierte Potential in Gleichung (10.15) das effektive Potential

$$V_{\text{eff},\mathbf{q}}(t) = V_{\text{ext},\mathbf{q}}(t) + V_{\mathbf{q}} \sum_{\rho\mathbf{k}\mathbf{s}} \delta n_{\rho\mathbf{k}\mathbf{q}}(t). \quad (10.16)$$

Die Definition der longitudinalen dielektrischen Funktion lautet

$$\epsilon_L(q, \omega) = \frac{V_{0, \text{ext}, q}(\omega)}{V_{\text{eff}, q}(\omega)}. \quad (10.17)$$

Für diese Funktion folgt aus Gleichung (10.16)

$$\epsilon_L(q, \omega) = \epsilon_0 [1 - V_q \Pi(q, \omega)] \quad (10.18)$$

mit der longitudinalen Polarisierbarkeit

$$\Pi(q, \omega) = \sum_{\rho k s} \frac{\delta n_{\rho k q}(\omega)}{V_{\text{eff}, q}(\omega)}. \quad (10.19)$$

Das Ziel muß also im folgenden sein, mit Hilfe der Bewegungsgleichung (10.11) einen Ausdruck für die Größen $\delta n_{\rho k q}(\omega)$ herzuleiten. Mit Gleichung (10.11) findet man die Beziehung

$$p_{k-q/2}^* \delta \dot{n}_{cvkq} + p_{k+q/2} \delta \dot{n}_{vckq} = (1 - n_{k-q/2} - n_{k+q/2}) \delta \dot{n}_{cckq}. \quad (10.20)$$

Hieraus resultiert durch Integration die Formel

$$\delta n_{cckq} = \frac{p_{k-q/2}^* \delta n_{cvkq} + p_{k+q/2} \delta n_{vckq}}{1 - n_{k-q/2} - n_{k+q/2}}. \quad (10.21a)$$

Ebenso erhält man

$$\delta n_{vckq} = - \frac{p_{k+q/2}^* \delta n_{cvkq} + p_{k-q/2} \delta n_{vckq}}{1 - n_{k-q/2} - n_{k+q/2}}. \quad (10.21b)$$

Die Gleichungen (10.21) stellen Verallgemeinerungen der Beziehung (9.60) dar [23, Glg. (46)]. Aufgrund dieser Beziehungen genügt es nun, die Größe

$$\delta n_{cv\mathbf{k}\mathbf{q}}(\omega) = \delta n_{vc\mathbf{k},-\mathbf{q}}^*(-\omega) \quad (10.22)$$

zu berechnen. Für beliebige Ladungsträgerdichte kann das Gleichungssystem (10.11) nur numerisch behandelt werden [94]. In linearer Näherung bezüglich der Anregungsdichte kann man jedoch analytisch zu einer Formel für die dielektrische Funktion ϵ_L , Glg. (10.18), gelangen. Da in den Größen (10.21) bereits die optische Polarisation $p_{\mathbf{k}}$ auftritt, genügt es dazu, die Auslenkung $\delta n_{cv\mathbf{k}\mathbf{q}}$ linear bezüglich $p_{\mathbf{k}}$ zu berechnen. Gleichung (10.11) für $(\rho\nu)=(cv)$ vereinfacht sich dann zu

$$i \frac{\partial}{\partial t} \delta n_{cv\mathbf{k}\mathbf{q}} = \sum_{\mathbf{k}'} [(\epsilon_{c,\mathbf{k}+\mathbf{q}/2} - \epsilon_{v,\mathbf{k}-\mathbf{q}/2}) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}] \delta n_{cv\mathbf{k}'\mathbf{q}} - (p_{\mathbf{k}+\mathbf{q}/2} - p_{\mathbf{k}-\mathbf{q}/2}) V_{eff,\mathbf{q}}. \quad (10.23)$$

Bei Gleichung (10.23) handelt es sich um eine Wanniergleichung, in der ein Quellterm $\propto V_{eff}$ auftritt. Während allerdings auf optischem Wege (bei Vernachlässigung des Photonimpulses) nach Gleichung (3.37) nur Exzitonen mit verschwindendem Schwerpunktsimpuls $\mathbf{q}$ erzeugt werden, treibt das Potential V_{eff} auch Exzitonzustände mit endlichem $\mathbf{q}$ an. Zur Lösung von Gleichung (10.23) ist es, wie zur Lösung des Wasserstoffproblems, notwendig, Relativbewegung und Schwerpunktsbewegung zu separieren. Dazu sei anstelle der Funktion $\delta n_{cv\mathbf{k}\mathbf{q}}$, die durch die Gleichungen (10.4) und (10.5) gegeben ist, die Funktion

$$\delta \hat{n}_{cv\mathbf{k}\mathbf{q}} = -i \int d^d r \int d^d \hat{\rho} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\mathbf{q}\cdot\hat{\rho}} \delta G_{cv}^{+-}(\mathbf{R}\mathbf{R}') \quad (10.24)$$

definiert, wobei

$$\hat{\rho} = \alpha \mathbf{R} + \beta \mathbf{R}' = \boldsymbol{\rho} + (\alpha - \beta) \mathbf{r}/2 \quad (10.25)$$

mit

$$\alpha = 1 - \beta = m_e/M \quad (10.26)$$

($M=m_e+m_h$) der Massenschwerpunkt von Elektron und Loch ist. Es ergibt sich der Zusammenhang

$$\delta \hat{n}_{cvkq} = \delta n_{cvkq} \quad (10.27)$$

mit

$$\hat{k} = k - (\alpha - \beta) q/2. \quad (10.28)$$

Mit dieser Transformation separiert die kinetische Energie in Gleichung (10.23) in die Anteile der Relativbewegung und der Schwerpunktsbewegung:

$$\epsilon_{c,k+q/2} - \epsilon_{v,k-q/2} = E_g + \hat{k}^2/2m + q^2/2M. \quad (10.29)$$

Aus Gleichung (10.23) wird nun

$$i \frac{\partial}{\partial t} \delta \hat{n}_{cvkq} = \sum_{\hat{k}'} H_{0\hat{k}\hat{k}'q} \delta \hat{n}_{cv\hat{k}'q} - (p_{\hat{k}+\alpha q} - p_{\hat{k}-\beta q}) V_{eff,q} \quad (10.30)$$

mit der Hamiltonfunktion

$$H_{0\hat{k}\hat{k}'q} = H_{0\hat{k}\hat{k}'} + q^2/2M. \quad (10.31)$$

Gleichung (10.30) kann durch Fouriertransformation $t \rightarrow \omega$ und durch Entwicklung nach ungestörten Exzitonwellenfunktionen gelöst werden. Als retardierte Lösung findet man

$$\begin{aligned} \delta n_{cvkq}(\omega) &= \delta \hat{n}_{cvkq}(\omega) \\ &= \sum_{n,\hat{k}} \phi_{n\hat{k}}^* \frac{\phi_{n\hat{k}'}^* (p_{\hat{k}'+\alpha q} - p_{\hat{k}'-\beta q})}{\omega_{nq} - \omega - i\delta} V_{eff,q}(\omega - \omega_p). \end{aligned} \quad (10.32)$$

Hierin ist p' die in Gleichung (7.3) definierte Amplitude der optischen Polarisation, und ω_{nq} ist die Gesamtenergie des Exzitonzustandes $|nq\rangle$:

$$\omega_{nq} = \omega_n + q^2/2M. \quad (10.33)$$

Mit Gleichung (10.32) und den Beziehungen (10.21) und (10.22) läßt sich nun die longitudinale dielektrische Funktion (10.18) berechnen zu

$$\epsilon_L(\mathbf{q}, \omega) = \epsilon_0 \left[1 - 2V_q \sum_n \left(\frac{|M_{pnq}|^2}{\omega - \omega_{nq} + \omega_p + i\delta} - \frac{|M_{pn,-q}|^2}{\omega + \omega_{nq} - \omega_p + i\delta} \right) \right]. \quad (10.34)$$

Hierin ist das Matricelement M gegeben durch

$$M_{pnq} = \sum_{\mathbf{k}} (p_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^* - p_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^*) \phi_{n\mathbf{k}} \quad (10.35a)$$

$$= \int d^3r p^*(\mathbf{r}) (e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} - e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}) \phi_n(\mathbf{r}). \quad (10.35b)$$

Setzt man die Entwicklung (3.42) der optischen Polarisation p in Gleichung (10.35b) ein, so entstehen die bekannten Matricelemente $M_{nn'}$ der Exziton-Exziton-Streuung [12, Glg. (5.40)].

Der langwellige Grenzfall $q \rightarrow 0$ der Formel (10.34) wurde in der Arbeit [23, Glg. (79)] angegeben. Zu einer Interpretation dieser Formel für die longitudinale dielektrische Funktion virtueller Elektron-Loch-Paare gelangt man, indem man sie mit der dielektrischen Funktion reeller $1s$ -Exzitonen vergleicht. Diese ist gegeben durch [12, Glg. (5.43)]

$$\epsilon_L(\mathbf{q}, \omega) = \epsilon_0 \left[1 - n_{1s} V_q \sum_n \left(\frac{|M_{1nq}|^2}{\omega - \omega_{nq} + \omega_{1s} + i\delta} - \frac{|M_{1n,-q}|^2}{\omega + \omega_{nq} - \omega_{1s} + i\delta} \right) \right]. \quad (10.36)$$

Die dielektrische Funktion (10.36) beschreibt die Abschirmung durch reelle $1s$ -Exzitonen der Dichte n_{1s} . An der Polstruktur dieser Formel kann das longitudinale Anregungsspektrum dieses Systems abgelesen werden. Eine longitudinale Einteilchenanregung besteht hier darin, daß ein $1s$ -Exziton der Energie ω_{1s} in einen angeregten Zustand $|nq\rangle$ der Energie ω_{nq} versetzt wird. Im allgemeinen ist sowohl

Intrabandstreuung ($n=1s$) als auch Interbandstreuung möglich. Im langwelligen Grenzfall $q \rightarrow 0$ sind nur Übergänge möglich, bei denen ein elektrisches Dipolmoment auftritt (s. Glg. (10.37)). Die energetisch niedrigste Anregung ist dann der Übergang $1s \rightarrow 2p$, bei dem die Energielücke $\omega_{2p} - \omega_{1s}$ überbrückt werden muß. Diese Lücke im Anregungsspektrum ist die rechnerische Ursache für die schwache abschirmende Wirkung von Exzitonen. Insbesondere erhält man für die statische, langwellige dielektrische Konstante $\epsilon_L(q \rightarrow 0, \omega=0)$, anders als im Falle eines Elektron-Loch-Plasmas (vgl. Glg. (6.30)), einen endlichen Wert:

$$\begin{aligned} \epsilon_L(q \rightarrow 0, \omega=0) &= \epsilon_0 + 8\pi n_{1s} \sum_n \frac{|(1|er|n)|^2}{\omega_n - \omega_{1s}} \\ &= \epsilon_0 (1 + 18\pi n_{1s} a_0^3) \quad \text{in 3D} \end{aligned} \quad (10.37)$$

[12, Glg. (5.47)]. Ein Elektron-Loch-Plasma vermag aufgrund seines metallischen Charakters statische langwellige Störungen perfekt abzuschirmen. Insbesondere verliert das Coulombpotential durch metallische Abschirmung seine große Reichweite (s. Glg. (6.33)). Die dielektrische Abschirmung durch die elektrisch neutralen, gebundenen Elektron-Loch-Paare dagegen kann dem Coulombpotential seine große Reichweite nicht nehmen. Die dielektrische Funktion (10.34) virtueller Elektron-Loch-Paare unterscheidet sich formal lediglich darin von der dielektrischen Funktion (10.36), daß im Matrixelement M anstelle des Grundzustandes $|1s\rangle$ reeller $1s$ -Exzitonen der Grundzustand $|p\rangle$ des kohärent getriebenen Systems auftritt,

$$\sqrt{n_{1s}} |1s\rangle \rightarrow \sqrt{2} |p\rangle = \sqrt{2} \sum_n p_n |n\rangle, \quad (10.38)$$

und daß entsprechend im Energienenner in Gleichung (10.34) anstelle der Energie ω_{1s} die Energie ω_p virtueller Elektron-Loch-Paare auftritt. Für $\omega_p \rightarrow \omega_{1s}$ sind die beiden Formeln (10.34) und (10.36) formal identisch, denn in diesem Grenzfall sammeln sich alle virtuellen Elektron-Loch-Paare im $1s$ -Niveau an:

$$\begin{aligned} |p\rangle &\rightarrow p_{1s} |1s\rangle, \\ n &= 2 \sum_k |p_k|^2 = 2 \sum_n |p_n|^2 \rightarrow 2 |p_{1s}|^2 \hat{=} n_{1s}. \end{aligned} \quad (10.39)$$

Allerdings ist zu bedenken, daß in einem System reeller Exzitonen Singlett- und Triplettzustände, sofern ihre energetische Entartung nicht aufgehoben ist, gleichermaßen besetzt werden, während dies für virtuelle Elektron-Loch-Paare, die mit der optischen Polarisation verknüpft sind, nicht der Fall ist [15].

Der Vergleich der Formeln (10.34) und (10.36) zeigt, daß die Physik der Abschirmung durch virtuelle Elektron-Loch-Paare nicht grundsätzlich verschieden ist von der Abschirmung durch reelle Teilchen. Sie erfolgt in beiden Fällen durch virtuelle Übergänge von Elektron-Loch-Paaren in angeregte Zustände $|nq\rangle$. Der Unterschied besteht lediglich darin, daß im Falle der virtuellen Ladungsträger der Ausgangszustand bereits ebenfalls virtuell ist. Quantitativ kann jedoch ein erheblicher Unterschied zwischen dem Abschirmverhalten reeller Elektron-Loch-Paare und der Abschirmung durch virtuelle Ladungsträger bestehen. Dies ist durch das Auftreten der Laserfrequenz ω_p anstelle der Exzitonenergie ω_{1s} in Gleichung (10.34) bedingt. Bereits die Abschirmung durch 1s-Exzitonen ist aufgrund der Energielücke $\omega_{2p}-\omega_{1s}$, die in ihrem langwelligen Anregungsspektrum auftritt, nicht sehr wirksam. Auf virtuelle Ladungsträger trifft dies aber umso mehr zu, denn die Energielücke $\omega_{1s}-\omega_p$ (bzw. $\omega_{2p}-\omega_p$ für $q \rightarrow 0$), die im Anregungsspektrum virtueller Elektron-Loch-Paare auftritt, beträgt häufig ein Mehrfaches der Exzitonbindungsenergie.

Wie schwach die abschirmende Wirkung virtueller Elektron-Loch-Paare tatsächlich ist, wird noch klarer werden, sobald feststeht, welche Frequenzen ω in Gleichung (10.34) zur Renormierung des Exzitonspektrums eine Rolle spielen. Dies wird im folgenden Abschnitt bei der Berechnung der Korrelationsselbstenergie der Ladungsträger erkennbar werden.

10.2 Die Korrelationsselbstenergie virtueller Ladungsträger

Die im vorangegangenen Abschnitt hergeleitete longitudinale dielektrische Funktion virtueller Elektron-Loch-Paare soll nun dazu verwendet werden, die Korrelationsselbstenergie der Ladungsträger im Rahmen der abgeschirmten Hartree-Fock-Approximation zu berechnen. Diese Selbstenergie liefert, eingesetzt in die Gleichung der optischen Polarisation, Korrelationsbeiträge zum exzitonischen optischen Stark-Effekt. Die modifizierte Wanniergleichung, zu der man auf diesem Wege gelangt, bildet eine nichtlineare Integralgleichung dritter Ordnung für die optische Polarisation.

Zur Berechnung des Einflusses der Abschirmung durch virtuelle Elektron-Loch-Paare auf das Exzitonspektrum erweist es sich als notwendig, die Dynamik der Korrelationsprozesse zu berücksichtigen. Ein statisch abgeschirmtes Coulombpotential, wie es zur Beschreibung eines dichten Elektron-Loch-Plasmas geeignet war, kann für virtuelle Ladungsträger nicht verwendet werden. Durch die Annahme einer instantanen Abschirmung würde man die Korrelationsbeiträge virtueller Anregungen weit überschätzen (s. Glg. (10.70) ff.). Aus diesem Grund muß der Untersuchung der Korrelationsbeiträge zum exzitonischen optischen Stark-Effekt die allgemeine Gleichung der optischen Polarisation, Glg. (5.54), zugrunde gelegt werden. Gleichung (5.54) führt, wie in Abschnitt 8.1 aufgezeigt wurde, auf Integralgleichungen sowohl im Impulsraum als auch im Frequenzraum. Dieses Problem konnte bisher nicht einmal für ein Gleichgewichtssystem gelöst werden. Stattdessen wurde in einigen Arbeiten ein

Näherungsverfahren angewendet, das als Shindo-Approximation bekannt ist [12, §4.3.1]. Von einer entsprechenden Näherung wird hier ebenfalls Gebrauch gemacht werden. Um die Zeitabhängigkeit des Systems infolge der Oszillation des Laserfeldes zu eliminieren, sollen wieder die in Abschnitt 8.1 definierten transformierten Greenschen Funktionen G' und Selbstenergien Σ' , Glg. (8.3-4), verwendet werden. Diese transformierten Funktionen beschreiben ein stationäres, homogenes System, das sich in seinem Grundzustand befindet. Dabei handelt es sich um den sogenannten 'kohärenten Grundzustand', der die Wirkung des Laserfeldes mit einschließt. Da es sich in diesem Sinne also um ein Gleichgewichtssystem handelt, lassen sich auf die Funktionen G' und Σ' die in Abschnitt 5.2 angegebenen Gleichgewichtsbeziehungen, Glg. (5.40) und Glg. (5.41), anwenden, wobei nun als Neuerung allerdings Nichtdiagonalelemente bezüglich der Bandindizes auftreten. Begonnen sei mit der Berechnung der Funktionen $\Sigma'_{\rho\nu}{}^{+-}$. Nach Gleichung (5.57) sind diese Funktionen gegeben durch

$$\Sigma'_{\rho\nu\mathbf{k}}{}^{+-}(\omega) = \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi i} V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'}{}^{+-}(\omega-\omega') G'_{\rho\nu\mathbf{k}'}{}^{+-}(\omega'). \quad (10.40)$$

Für die Größe $V_{\mathbf{s}}{}^{+-}$ gilt nach Gleichung (6.12) für ein Gleichgewichtssystem, das sich in seinem Grundzustand befindet

$$V_{\mathbf{s}\mathbf{q}}{}^{+-}(\omega) = i\theta(-\omega) A_{\mathbf{s}\mathbf{q}}(\omega). \quad (10.41)$$

Da die dielektrische Funktion ϵ_L nur linear bezüglich der Anregungsdichte bekannt ist, darf die Spektralfunktion $A_{\mathbf{s}}$, Glg. (6.18), ebenfalls nur in linearer Form verwendet werden:

$$A_{\mathbf{s}\mathbf{q}}(\omega) \simeq 2V_{\mathbf{q}} \operatorname{Im} \epsilon_L(\mathbf{q},\omega)/\epsilon_0. \quad (10.42)$$

In dieser Näherung berücksichtigt die Spektralfunktion lediglich Einteilchenanregungen im System der virtuellen Ladungsträger, jedoch keine kollektiven Anregungen. Für die Greenschen Funktionen gilt entsprechend Gleichung (5.40) die Gleichgewichtsbeziehung

$$G'_{\rho\nu\mathbf{k}}{}^{+-}(\omega) = i f'(\omega) A'_{\rho\nu\mathbf{k}}(\omega) \quad (10.43)$$

mit der Spektralfunktion

$$A'_{\rho\nu\mathbf{k}}(\omega) = i (G'^r_{\rho\nu\mathbf{k}}(\omega) - G'^a_{\rho\nu\mathbf{k}}(\omega)). \quad (10.44)$$

Da sich das zeitlich transformierte System im totalen Gleichgewicht befindet, tritt in Gleichung (10.43) lediglich eine Verteilungsfunktion f' auf (vgl. [75, Glg. (44)]). Dabei handelt es sich um die Fermiverteilung für $T=0K$:

$$f'(\omega) = \theta(\mu'_\rho - \omega). \quad (10.45)$$

Die individuellen chemischen Potentiale μ'_c und μ'_v des zeitlich transformierten Systems, in dem die Einteilchenenergien um die Laserfrequenz ω_p aufeinander zugeschoben sind (s. Figur 8.1 auf S.132), sind miteinander identisch:

$$\mu' = \mu'_c - \mu'_v = 0. \quad (10.46a)$$

Übertragen auf das nichttransformierte System bedeutet Gleichung (10.46a)

$$\mu = \mu_c - \mu_v = \omega_p. \quad (10.46b)$$

Die Beziehung (10.46b) bringt zum Ausdruck, daß sich das System mit dem Pumpstrahl im Gleichgewicht befindet, und daß somit keine Absorption des Pumpstrahles mehr erfolgt. Diese Annahme ist nur bei nichtresonanter Anregung gerechtfertigt. Bei resonanter Anregung dagegen, etwa bei der Erzeugung eines Elektron-Loch-Plasmas, gilt infolge der Relaxationsprozesse der Ladungsträger immer $\mu < \omega_p$.

In Abschnitt 8.1, Glg. (8.11-13) wurden die Greenschen Funktionen $G^r_{\rho\nu}$ angegeben und die Renormierung der Einteilchenenergien geschildert, die durch die Wechselwirkung der Ladungsträger mit dem kohärenten Lichtfeld verursacht wird. Da die Spektralfunktion A_ρ des abgeschirmten Coulombpotentials, Glg. (10.42), bereits quadratisch in der optischen Polarisation $p_\mathbf{k}$ ist, dürfen die Greenschen Funktionen G'^{+-} in der Selbstenergie (10.40) nur linear bezüglich $p_\mathbf{k}$ eingesetzt werden. Deshalb entfällt hier die Komplikation der Bandvermischung. Linear bezüglich der optischen Polarisation gilt nach Gleichung (8.17) einfach

$$G'^r_{\rho\rho\mathbf{k}}(\omega) \simeq \frac{1}{\omega + i\delta - \epsilon'_{\rho\mathbf{k}}}. \quad (10.47)$$

Für die Funktion $G'^r_{cv\mathbf{k}}(\omega)$, die die optische Polarisation repräsentiert, soll nun nicht einfach die lineare Lösung eingesetzt werden, da ja eine Gleichung dritter Ordnung für die optische Polarisation gesucht ist. Die lineare Lösung kann aber einen Hinweis für eine sinnvolle Annahme bezüglich der Frequenzabhängigkeit der Funktion $G'^r_{cv\mathbf{k}}(\omega)$ liefern. Im linearen Grenzfall folgt aus den Gleichungen (8.18) und (9.58)

$$G_{cvk}^r(\omega) = - p_k' \left(\frac{1}{\omega + i\delta - \epsilon_{ck}'} - \frac{1}{\omega + i\delta - \epsilon_{vk}'} \right) \quad (10.48)$$

Diese Form der Frequenzabhängigkeit der Funktion $G_{cvk}^r(\omega)$, die im linearen Fall vorliegt, soll nun näherungsweise für den nichtlinearen Fall übernommen werden. Dieses Vorgehen entspricht etwa der Shindo-Approximation [12, §4.3.1].

Für die Selbstenergie (10.40) folgt nun mit Hilfe der Beziehungen (10.43-45) und (10.47-48) bis zur dritten Ordnung in der optischen Polarisation

$$\Sigma_{cck}^{\prime+-}(\omega) = 0, \quad (10.49)$$

$$\Sigma_{vvk}^{\prime+-}(\omega) = \sum_{k'} V_{s,k-k'}^{+-}(\omega - \epsilon_{vk}'), \quad (10.50)$$

$$\Sigma_{cvk}^{\prime+-}(\omega) = \sum_{k'} V_{s,k-k'}^{+-}(\omega - \epsilon_{vk}') p_{k'}'. \quad (10.51)$$

Analog findet man

$$\Sigma_{cck}^{\prime-+}(\omega) = - \sum_{k'} V_{s,k-k'}^{-+}(\omega - \epsilon_{ck}'), \quad (10.52)$$

$$\Sigma_{vvk}^{\prime-+}(\omega) = 0, \quad (10.53)$$

$$\Sigma_{cvk}^{\prime-+}(\omega) = \sum_{k'} V_{s,k-k'}^{-+}(\omega - \epsilon_{ck}') p_{k'}'. \quad (10.54)$$

Mit Hilfe der Spektraldarstellung (5.36) und mit $2\Gamma = i\Sigma^{+-} - i\Sigma^{-+}$ ergibt sich ferner für die retardierte Korrelationsselbstenergie

$$\Sigma_{c\mathbf{k}}^{c,r}(\omega) = - \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi i} \frac{V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+}(\omega')}{\omega - \omega' - \epsilon'_{c\mathbf{k}'} + i\delta}, \quad (10.55)$$

$$\Sigma_{v\mathbf{k}}^{c,r}(\omega) = - \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi i} \frac{V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+-}(\omega')}{\omega - \omega' - \epsilon'_{v\mathbf{k}'} + i\delta}, \quad (10.56)$$

$$\Sigma_{cv\mathbf{k}}^{c,r}(\omega) = \sum_{\mathbf{k}'} \int \frac{d\omega'}{2\pi i} \frac{V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+}(\omega' - \epsilon'_{c\mathbf{k}'}) - V_{s,\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+-}(\omega' - \epsilon'_{v\mathbf{k}'})}{\omega - \omega' + i\delta} p'_{\mathbf{k}'}. \quad (10.57)$$

10.3 Die Gleichung der optischen Polarisation unter Berücksichtigung dynamischer Korrelationseffekte

Die soeben berechneten Ausdrücke für die Korrelationsselbstenergie der virtuellen Ladungsträger sollen nun in die Gleichung (8.5) der optischen Polarisation eingesetzt werden. Für den stationären Fall und für $t=t'$ ergibt sich aus Gleichung (8.5)

$$0 = (e_{c\mathbf{k}}^{\text{HF}} - e_{v\mathbf{k}}^{\text{HF}}) p'_{\mathbf{k}} - (1 - 2n_{\mathbf{k}}) W'_{\mathbf{k}} \quad (10.58)$$

$$+ \sum_{\mu} \int \frac{d\omega}{2\pi i} [\Sigma_{c\mu\mathbf{k}}^{c,r}(\omega) G_{\mu v\mathbf{k}}^{+-}(\omega) - \Sigma_{c\mu\mathbf{k}}^{+-}(\omega) G_{\mu v\mathbf{k}}^a(\omega)]$$

$$+ \sum_{\mu} \int \frac{d\omega}{2\pi i} [G_{c\mu\mathbf{k}}^r(\omega) \Sigma_{\mu v\mathbf{k}}^{+-}(\omega) - G_{c\mu\mathbf{k}}^{+-}(\omega) \Sigma_{\mu v\mathbf{k}}^{c,r}(\omega)].$$

Die erste Zeile in Gleichung (10.58) stellt den Hartree-Fock-Anteil der Polarisationsgleichung dar (s. Glg. (9.52)). In die zweite und in die dritte Zeile, die die Korrelationsbeiträge darstellen, sind die Formeln (10.48-57) für die Greenschen Funktionen und für die Korrelationsselbstenergien einzusetzen. In dritter Ordnung in der

optischen Polarisation entfällt neben dem Term $\Sigma'_{cc}{}^{+-} G'_{cv}{}^a$ noch der Term $G'_{cc}{}^{+-} \Sigma_{cv}^a$. Die verbleibenden Beiträge fassen sich zusammen zu

$$\begin{aligned}
 0 &= (e_{\mathbf{c}\mathbf{k}}^{\text{HF}} - e_{\mathbf{v}\mathbf{k}}^{\text{HF}}) p'_{\mathbf{k}} - (1 - 2n_{\mathbf{k}}) W'_{\mathbf{k}} \\
 &+ \int \frac{d\omega}{2\pi i} \left[\frac{\Sigma'_{\mathbf{c}\mathbf{c}\mathbf{k}}{}^{+-}(\omega) p'_{\mathbf{k}}}{\epsilon'_{\mathbf{v}\mathbf{k}} - \omega + i\delta} - \frac{\Sigma'_{\mathbf{v}\mathbf{v}\mathbf{k}}{}^{+-}(\omega) p'_{\mathbf{k}}}{\omega - \epsilon'_{\mathbf{c}\mathbf{k}} + i\delta} \right] \\
 &+ \int \frac{d\omega}{2\pi i} \left[\frac{\Sigma'_{\mathbf{c}\mathbf{v}\mathbf{k}}{}^{+-}(\omega)}{\epsilon'_{\mathbf{v}\mathbf{k}} - \omega + i\delta} + \frac{\Sigma'_{\mathbf{c}\mathbf{v}\mathbf{k}}{}^{+-}(\omega)}{\omega - \epsilon'_{\mathbf{c}\mathbf{k}} + i\delta} \right].
 \end{aligned} \tag{10.59}$$

Die zweite Zeile in Gleichung (10.59) liefert die Selbstenergiekorrekturen zu den Einteilchenenergien $e_{\mathbf{p}\mathbf{k}}$. Die Terme in der dritten Zeile stellen die zugehörigen Vertexkorrekturen dar. Um zu einer modifizierten Wanniergleichung zu gelangen, sei nun ein effektives Potential definiert durch

$$\Delta V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\omega_p) = - \int \frac{d\omega}{2\pi i} \left[\frac{V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+-}(\omega)}{\omega - \epsilon_{\mathbf{c}\mathbf{k}} + \epsilon_{\mathbf{v}\mathbf{k}'} + \omega_p + i\delta} + \frac{V_{\mathbf{s},\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{+-}(\omega)}{-\omega - \epsilon_{\mathbf{c}\mathbf{k}'} + \epsilon_{\mathbf{v}\mathbf{k}} + \omega_p + i\delta} \right]. \tag{10.60}$$

Mit Hilfe dieser Größe wird Gleichung (10.59) zu

$$\begin{aligned}
 0 &= (e_{\mathbf{c}\mathbf{k}}^{\text{HF}} - e_{\mathbf{v}\mathbf{k}}^{\text{HF}} - \omega_p) p_{\mathbf{k}} - (1 - 2n_{\mathbf{k}}) W_{\mathbf{k}} \\
 &+ \sum_{\mathbf{k}'} \Delta V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\omega_p) (p_{\mathbf{k}} - p_{\mathbf{k}'}).
 \end{aligned} \tag{10.61}$$

Die Korrelationsbeiträge zu Gleichung (10.61) sind die Selbstenergiekorrektur und die Vertexkorrektur, die aus der Ausbildung des Coulombbloches resultieren. Schreibt man Gleichung (10.61) um zu einer getriebenen, modifizierten Wanniergleichung (vgl. Glg. (9.63-67)), so entsteht aus diesen Termen der Korrelationsbeitrag

$$\Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^c(\omega_p) = \sum_{\mathbf{k}''} \Delta V_{\mathbf{k}\mathbf{k}''}(\omega_p) (\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} - \delta_{\mathbf{k}'\mathbf{k}''}) \quad (10.62)$$

zur Hamiltonfunktion, der dieselbe Struktur besitzt wie der erste Beitrag zur Hamiltonfunktion (7.21). Durch die Transformation $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{n}$ in das Exzitonbild entsteht hieraus

$$\Delta H_{\mathbf{n}\mathbf{n}'}^c(\omega_p) = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} (\phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}} - \phi_{\mathbf{n}\mathbf{k}'})^* (\phi_{\mathbf{n}'\mathbf{k}} - \phi_{\mathbf{n}'\mathbf{k}'}) \Delta V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\omega_p). \quad (10.63)$$

Hierbei wurde die Symmetrirelation

$$\Delta V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\omega_p) = \Delta V_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}(\omega_p) \quad (10.64)$$

verwendet, die man mit Hilfe von Gleichung (6.15) nachprüfen kann. Setzt man die Ausdrücke (10.41-42) für V_g^{+-} und den Ausdruck (10.60) für das effektive Potential ΔV in Gleichung (10.63) ein, so entsteht für die Exzitonselbstenergie die Formel

$$\begin{aligned} \Delta H_{\mathbf{n}\mathbf{n}'}^c(\omega_p) = & - \sum_{\mathbf{k}\mathbf{q}} V_{\mathbf{q}} (\phi_{\mathbf{n},\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \phi_{\mathbf{n},\mathbf{k}-\mathbf{q}})^* (\phi_{\mathbf{n}',\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \phi_{\mathbf{n}',\mathbf{k}-\mathbf{q}}) \\ & \times \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{\text{Im } \epsilon_L(\mathbf{q},\omega)/\epsilon_0}{\omega + E_g + k^2/2m + q^2/2M - \omega_p - i\delta}. \end{aligned} \quad (10.65)$$

10.4 Die Berücksichtigung der exzitonischen Korrelation virtueller Zwischenzustände

Das Ergebnis (10.65) für die Exzitonselbstenergie ist für $\mathbf{n}=\mathbf{n}'=\mathbf{l}$ s in seiner Form identisch mit dem entsprechenden Ausdruck für ein Gleichgewichtssystem reeller Elektron-Loch-

Paare [70, Glg. (13)] und muß auch derselben Kritik unterzogen werden. Diese Kritik betrifft das Auftreten der Energie $\omega_k = E_g + k^2/2m$ unkorrelierter Elektron-Loch-Paare im Energienenner von Gleichung (10.65). Mit Hilfe der Beziehung

$$(\phi_{n,k+\alpha q} - \phi_{n,k-\beta q})^* = \langle n | e^{i\alpha q \cdot r} - e^{-i\beta q \cdot r} | k \rangle = M_{nkq} \quad (10.66)$$

(vgl. Glg. (10.35)) erkennt man, daß in Gleichung (10.65) der Operator

$$\hat{G}_0(\omega) = \sum_k \frac{|k\rangle\langle k|}{\omega_k - \omega} \quad (10.67)$$

der Greenschen Funktion unkorrelierter Elektron-Loch-Paare auftritt. Das Auftreten dieses Ausdrucks zeigt an, daß im Rahmen der abgeschirmten Hartree-Fock-Approximation die exzitonsche Korrelation in virtuellen Zwischenzuständen nicht berücksichtigt wird. Während man diese Paarkorrelation in der Theorie eines Elektron-Loch-Plasmas in erster Näherung vernachlässigen kann, muß man sie in einem exzitonschen System unbedingt berücksichtigen. Die dazu notwendige Theorie ist allerdings ungleich aufwendiger als die hier dargestellte Rechnung. Das Ergebnis einer entsprechenden Untersuchung ist jedoch unmittelbar einleuchtend [70, Glg. (14)]. Es besteht für die Exzitonselbstenergie in der Ersetzung des Operators (10.67) unkorrelierter Elektron-Loch-Paare durch den Operator der Coulomb-Greensfunktion (3.57):

$$\hat{G}_0(\omega) \rightarrow \hat{G}(\omega) = \sum_n \frac{|n\rangle\langle n|}{\omega_n - \omega} \quad (10.68)$$

Führt man diese 'Aufwertung' in Gleichung (10.65) durch, so erhält man für die Exzitonselbstenergie schließlich die Formel

$$\Delta H_{nn'}^c(\omega_p) = - \sum_{n_1 q} V_q M_{nn_1 q} M_{n_1 n', -q} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\pi} \frac{\text{Im } \epsilon_L(q, \omega)/\epsilon_0}{\omega + \omega_{n_1 q} - \omega_p - i\delta} \quad (10.69)$$

Dieser Ausdruck besitzt für $n=n'=1s$ dieselbe Struktur wie die bekannte Formel für die Verschiebung der Energien reeller $1s$ -Exzitonen [12, Glg. (5.65)]. Der Unterschied besteht lediglich darin, daß in den Energienenner, wie in der Formel (10.34) der longitudinalen dielektrischen Funktion, die Energie ω_p virtueller Exzitonen anstelle der Energie ω_{1s}

reeller Exzitonen eingeht. Quantitativ ist dies allerdings ein bedeutender Unterschied. Die Beiträge zur Selbstenergie (10.69) beschreiben die Streuung eines virtuellen Elektron-Loch-Paares in einen angeregten Zustand $|n_1q\rangle$ unter Emission einer longitudinalen Anregung. Diese Prozesse sind offenbar nichtresonant. Daran ist bereits erkennbar, daß die Korrelationsbeiträge zum exzitonischen optischen Stark-Effekt tatsächlich klein sind. Insbesondere verschwindet für $n=n'$ der Imaginärteil der Selbstenergie (10.69):

$$\text{Im } \Delta H_{nn}^c(\omega_p) = 0. \quad (10.70)$$

Hieraus folgt, daß unter virtuellen Elektron-Loch-Paaren keine reellen Streuprozesse stattfinden können. Dieses Ergebnis läßt den wichtigen Schluß zu, daß durch virtuelle Ladungsträger keine Verminderung der Kohärenz optischer Polarisationschwingungen hervorgerufen wird.

An dieser Stelle wäre es möglich, zu einer quasistatischen Approximation der Korrelationsselbstenergie (10.69) gelangen, indem man im Energienenner des Ausdrucks (10.69) die Rückstoßenergie $\omega_{n_1q} - \omega_p$ vernachlässigt (vgl. Glg. (6.73)). Das erscheint hier jedoch fragwürdig, da die Energie $\omega_{n_1q} - \omega_p$ in derselben Größenordnung liegt wie die Energien ω der longitudinalen Einteilchenanregungen. Durch die Vernachlässigung der Rückstoßenergie würde man die abschirmende Wirkung virtueller Elektron-Loch-Paare sehr überschätzen. Angebracht erscheint es im vorliegenden Fall stattdessen, den Grenzfall großer Verstimmung zu betrachten, in welchem die Energie $\omega_{n_1q} - \omega_p$ durch die Verstimmung $\omega_{10} - \omega_p$ ersetzt werden kann [63].

10.5 Die Berücksichtigung der Exziton-Exziton-Wechselwirkung unter Fermionaustausch

Setzt man die longitudinale dielektrische Funktion (10.34) in die Korrelationsselbstenergie (10.69) der virtuellen Exzitonen ein, so entsteht der Ausdruck

$$\Delta H_{nn}^c(\omega_p) = -2 \sum_{n_1 n_2 q} V_q^2 \frac{M_{nn_1q} |M_{pn_2, -q}|^2 M_{n_1 n', -q}}{\omega_{n_1q} + \omega_{n_2q} - 2\omega_p - i\delta}. \quad (10.71)$$

Diese Formel läßt sich diagrammatisch wiedergeben als

(10.72)

wobei die Propagatoren hier Elektron-Loch-Paare darstellen. Das Diagramm (10.72) entspricht dem Selbstenergiebeitrag

(10.73)

der in einem System reeller Exzitonen auftritt. An die Stelle eines der Propagatoren tritt im kohärent getriebenen System das Produkt $p^* p$. Das zusammengesetzte Matrixelement

(10.74)

kann als das Matrixelement einer effektiven Exziton-Exziton-Wechselwirkung angesehen werden. Bei dem zugehörigen Wechselwirkungsprozess bleiben das Elektron und das Loch eines Paares einander zugeordnet. Diese Art der Streuung von Elektron-Loch-Paaren nennt man die direkte Exziton-Exziton-Wechselwirkung. Gleichberechtigt neben dieser Art der Wechselwirkung sind aber auch Streuprozesse von Elektron-Loch-Paaren möglich, bei denen die Paare ihre Partner tauschen. Diese Art der Streuung nennt man die Exziton-Exziton-Wechselwirkung unter Fermionenaustausch. Die Wechselwirkung unter Fermionenaustausch wird durch eine Diagrammklasse repräsentiert, die in der abgeschirmten Hartree-Fock-Näherung nicht enthalten ist. Bei den niedrigsten Beiträgen dieser Diagrammklasse handelt es sich um die Austauschdiagramme zweiter Ordnung in der Bornschen Näherung der Korrelationsselbstenergie [17, Glg. (5.27)]. Um zu erkennen, ob und in welcher Weise die Theorie erweitert werden kann, um auch diese Beiträge zu erfassen, soll im folgenden die Coulombwechselwirkung der Ladungsträger im Exzitonbild betrachtet werden.

Für niedrige Ladungsträgerdichte kann der Hamiltonoperator (2.15), der die Coulombwechselwirkung der Ladungsträger beschreibt, auf die Form wechselwirkender Exzitonen gebracht werden [12, §5.1]. Hierzu führt man Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren von Exzitonen ein gemäß

$$\Psi_i = \int de \int dh \phi_i^*(e,h) \Psi_e(e) \Psi_h(h) \quad (10.75)$$

mit der Abkürzung $\Psi_j(j) \hat{=} \Psi_j(r_j, s_j)$. Die durch Gleichung (10.75) definierten Exziton-Operatoren genügen in erster Ordnung bezüglich der Ladungsträgerdichte den Vertauschungsrelationen für Bose-Teilchen [12, Glg. (5.3)]. Der Index i in der Definition (10.75) ist die zusammengesetzte Exzitonquantenzahl

$$i=(n,q,J,M). \quad (10.76)$$

Neben den Quantenzahlen n und q für die Bewegung im Ortsraum treten hier die Drehimpulsquantenzahlen J und M auf, die den Spinzustand der Exzitonen charakterisieren. Die Exzitonwellenfunktion ϕ_i in Gleichung (10.75) ist gegeben durch

$$\phi_i(e,h) = \phi_n(r_e - r_h) e^{iq \cdot (\alpha r_e + \beta r_h)} \langle s_e s_h | JM \rangle. \quad (10.77)$$

Der Spinanteil der Wellenfunktion (10.77) ist durch die Glebsch-Gordon-Koeffizienten $\langle s_e s_h | JM \rangle$ bestimmt [2, §41]. Diese Koeffizienten lassen sich aus der Entwicklung der Spinzustände $|JM\rangle$ nach den Zuständen $|s_e s_h\rangle$ ablesen. Die Singlett-Funktion, die den Gesamtspin $J=0$ besitzt, ist gegeben durch

$$|J=0, M=0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|s_e=1/2, s_h=-1/2\rangle - |s_e=-1/2, s_h=1/2\rangle). \quad (10.78)$$

Die Tripletzustände sind

$$|J=1, M=1\rangle = |s_e=1/2, s_h=1/2\rangle, \quad (10.79a)$$

$$|J=1, M=0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|s_e=1/2, s_h=-1/2\rangle + |s_e=-1/2, s_h=1/2\rangle), \quad (10.79b)$$

$$|J=1, M=-1\rangle = |s_e=-1/2, s_h=-1/2\rangle. \quad (10.79c)$$

Das Lichtfeld treibt nur $M=0$ -Zustände an. Ob es sich dabei um den Singlett-Zustand (10.78), den Triplet-Zustand (10.79b) oder um eine Mischung aus beiden handelt, hängt

vom Polarisationszustand des Lichtfeldes und von der Spinabhängigkeit des optischen Matricelementes (s. Glg. (2.60)) ab [15].

In zweiter Ordnung bezüglich der Dichte der Ladungsträger läßt sich der Hamiltonoperator der Coulombwechselwirkung, Glg. (2.15), transformieren zu [12, Glg. (5.7)]

$$H_w = \frac{1}{2} \sum_{i_1 i_2 i_3 i_4} \langle i_1 i_2 | I | i_3 i_4 \rangle \Psi_{i_1}^+ \Psi_{i_2}^+ \Psi_{i_4} \Psi_{i_3}. \quad (10.80)$$

Dieser Operator beschreibt die effektive Coulombwechselwirkung zwischen Exzitonen. Das Matricelement I setzt sich zusammen aus dem Anteil I_d der direkten Exziton-Exziton-Wechselwirkung und dem Anteil I_x der Exziton-Exziton-Wechselwirkung unter Fermionenaustausch:

$$\langle i_1 i_2 | I | i_3 i_4 \rangle = \langle i_1 i_2 | I_d | i_3 i_4 \rangle + \langle i_1 i_2 | I_x | i_3 i_4 \rangle. \quad (10.81)$$

Diese Beiträge sind im Einzelnen

$$\langle i_1 i_2 | I_d | i_3 i_4 \rangle = \int de \int dh \int de' \int dh' \phi_{i_1}^*(e, h) \phi_{i_2}^*(e', h') \quad (10.82)$$

$$\times [V_{ee'} + V_{hh'} - V_{eh'} - V_{e'h}] \phi_{i_3}(e, h) \phi_{i_4}(e', h'),$$

$$\langle i_1 i_2 | I_x | i_3 i_4 \rangle = - \int de \int dh \int de' \int dh' \phi_{i_1}^*(e, h) \phi_{i_2}^*(e', h') \quad (10.83)$$

$$\times [V_{ee'} + V_{hh'} - V_{eh'} - V_{e'h}] \phi_{i_3}(e', h) \phi_{i_4}(e, h').$$

Durch Einsetzen der Exzitonwellenfunktion (10.77) resultiert für das Matricelement I_d , Glg. (10.82), die Formel

$$\langle i_1 i_2 | I_d | i_3 i_4 \rangle = \delta_{J_1 M_1, J_3 M_3} \delta_{J_2 M_2, J_4 M_4} \delta_{q_1 + q_2, q_3 + q_4} \quad (10.84)$$

$$\times V_{\mathbf{q}_1-\mathbf{q}_3} M_{n_1 n_3, \mathbf{q}_1-\mathbf{q}_3} M_{n_2 n_4, \mathbf{q}_2-\mathbf{q}_4}$$

mit dem Matrixelement M aus Gleichung (10.66). Nach Gleichung (10.84) bleiben bei der direkten Exziton-Exziton-Streuung die individuellen Spinzustände der Elektron-Loch-Paare erhalten (dies ist nicht der Fall für die Wechselwirkung unter Fermionaustausch). Ebenfalls erhalten bleibt wie gewöhnlich der Gesamtimpuls $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2$. Das verbleibende Produkt in Gleichung (10.84) ist gerade das zusammengesetzte Matrixelement (10.74). Dieser Zusammenhang ermöglicht es, die Korrelationsselbstenergie (10.71) durch die effektive Exziton-Exziton-Wechselwirkung I_d auszudrücken:

$$\Delta H_{nn}^c(\omega_p) = -2 \sum_{i_1 i_2} \frac{\langle np | I_d | i_1 i_2 \rangle \langle i_2 i_1 | I_d | pn' \rangle}{\omega_{i_1} + \omega_{i_2} - 2\omega_p - i\delta}. \quad (10.85)$$

Hierin bezeichnet das Symbol $|np\rangle$ den um den Spinanteil und den Anteil der Schwerpunktsbewegung ($\mathbf{q} \approx 0$) erweiterten Zustand der optisch erzeugten Elektron-Loch-Paare. Nun ist offensichtlich, daß im Rahmen der abgeschirmten Hartree-Fock-Approximation nur die direkte Exziton-Exziton-Wechselwirkung, nicht aber die Wechselwirkung unter Fermionaustausch erfaßt wird. Das Ergebnis (10.85) ist demnach unvollständig. Sehr plausibel erscheint, daß die vollständige Formel

$$\Delta H_{nn}^c(\omega_p) = -2 \sum_{i_1 i_2} \frac{\langle np | I | i_1 i_2 \rangle \langle i_2 i_1 | I | pn' \rangle}{\omega_{i_1} + \omega_{i_2} - 2\omega_p - i\delta} \quad (10.86)$$

lauten muß. Eine systematische Herleitung von Gleichung (10.86) ergibt sich, wenn man das kohärent getriebene Ladungsträgersystem von Beginn an im Exzitonbild behandelt [63]. Die hier gegebene Herleitung im Fermionenbild mit Hilfe der Erweiterungsschritte (10.68) und (10.85-86) besitzt den Vorteil, daß sie die Zusammenhänge zur Theorie des Elektron-Loch-Plasmas und die Grenzen der abgeschirmten Hartree-Fock-Näherung aufzeigt.

Gleichung (10.86) kann verglichen werden mit der entsprechenden Formel für ein System reeller Exzitonen [12, Glg. (6.13)]. Allerdings ist zu beachten, daß die Formel (10.86) (korrekterweise) noch keinen Boson-Austauschterm enthält. Ein Boson-Austauschbeitrag tritt, wie dies bereits in der Hartree-Fock-Theorie der Fall war (vgl. Glg. (9.68)), erst bei der Berechnung der Reaktion des getriebenen Systems auf einen Teststrahl auf. Die Selbstenergiebeiträge (10.86) stellen ohnehin keine direkten Beobachtungsgrößen dar, da sie in die optische Suszeptibilität des nichtresonanten Pumpstrahles eingehen. Im folgenden Abschnitt wird die Korrelationsselbstenergie berechnet, die in der optischen Suszeptibilität eines zusätzlich eingeschalteten Teststrahles auftritt.

10.6 Korrelationsbeiträge zur optischen Suszeptibilität des Teststrahles: die Wechselwirkung unter Boson-Austausch

Um die Korrelationsbeiträge zur linearen Reaktion des getriebenen Systems auf einen Teststrahl zu berechnen, muß nochmals von der zeitabhängigen Dyson-Gleichung (8.5) ausgegangen werden. In Anwesenheit des Teststrahles ist auch das durch die bezüglich der Frequenz ω_p transformierten Funktionen G' und Σ' , Glg. (8.3-4), beschriebene System zeitabhängig. Analog zu der Greenschen Funktion (10.4) eines räumlich inhomogenen Systems seien deshalb die Fourierkomponenten

$$G'_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(\omega, \Omega) = \int d\tau \int dT e^{i\omega\tau} e^{i\Omega T} G'_{\rho\nu\mathbf{k}}^{\xi\xi'}(t\tau) \quad (10.87)$$

mit $\tau=t-t'$ und $T=(t+t')/2$ betrachtet. Im Falle eines monochromatischen Teststrahles wird lediglich die Fourierkomponente $\Omega=\Delta\omega=\omega_t-\omega_p$ von außen angetrieben. Der für die optische Suszeptibilität des Teststrahles relevante Teil der optischen Polarisation ist

$$\delta p'_{\mathbf{k},+} = \int \frac{d\omega}{2\pi i} \delta G'_{c\nu\mathbf{k}}{}^{+-}(\omega, \Delta\omega). \quad (10.88)$$

Durch Linearisierung von Gleichung (8.5) findet man in Erweiterung von Gleichung (9.67)

$$\begin{aligned} 0 = & \sum_{\mathbf{k}'} [H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'} + \Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{HF}} - (\omega_t + i\delta) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}] \delta p'_{\mathbf{k}',+} - (1 - 2n_{\mathbf{k}}) \mu_{\mathbf{k}} E_t' \\ & + \sum_{\mu} \int \frac{d\omega}{2\pi i} \delta [\Sigma_{c\mu\mathbf{k}}{}^{c,r} G'_{\mu\nu\mathbf{k}}{}^{+-} - \Sigma_{c\mu\mathbf{k}}{}^{+-} G'_{\mu\nu\mathbf{k}}{}^a](\omega, \Delta\omega) \end{aligned} \quad (10.89)$$

$$+ \sum_{\mu} \int \frac{d\omega}{2\pi i} [\delta G_{c\mu\mathbf{k}}'^r \Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}'^{+-} - G_{c\mu\mathbf{k}}'^{+-} \Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}'^{c,a}](\omega, \Delta\omega).$$

In dieser Gleichung ist ΔH^{HF} der Hartree-Fock-Anteil (9.68) der Exzitonselbstenergie, und in der zweiten und dritten Zeile bedeutet

$$[fg](\omega, \Delta\omega) = \int d\tau \int dT e^{i\omega\tau} e^{i\Delta\omega T} [fg](t\tau'), \quad (10.90)$$

$$[fg](t\tau') = \int dt_1 f(tt_1) g(t_1\tau') \quad (10.91)$$

(vgl. Glg. (10.7-8)). Durch Anwendung der Formel (10.10) entsteht aus Gleichung (10.89)

$$\begin{aligned} 0 = & \sum_{\mathbf{k}'} [H_{0\mathbf{k}\mathbf{k}'} + \Delta H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{HF}} - (\omega_{\mathbf{k}} + i\delta) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}] \delta p_{\mathbf{k}',+}' - (1 - 2n_{\mathbf{k}}) \mu_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{k}}' \\ & + \sum_{\mu} \int \frac{d\omega}{2\pi i} [\Sigma_{c\mu\mathbf{k}}'^{c,r}(\omega + \Delta\omega/2) \delta G_{\mu\nu\mathbf{k}}'^{+-}(\omega, \Delta\omega) - \Sigma_{c\mu\mathbf{k}}'^{+-}(\omega + \Delta\omega/2) \delta G_{\mu\nu\mathbf{k}}'^a(\omega, \Delta\omega)] \\ & + \sum_{\mu} \int \frac{d\omega}{2\pi i} [\delta G_{c\mu\mathbf{k}}'^r(\omega, \Delta\omega) \Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}'^{+-}(\omega - \Delta\omega/2) - \delta G_{c\mu\mathbf{k}}'^{+-}(\omega, \Delta\omega) \Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}'^{c,a}(\omega - \Delta\omega/2)] \\ & + \sum_{\mu} \int \frac{d\omega}{2\pi i} [\delta \Sigma_{c\mu\mathbf{k}}'^{c,r}(\omega, \Delta\omega) G_{\mu\nu\mathbf{k}}'^{+-}(\omega - \Delta\omega/2) - \delta \Sigma_{c\mu\mathbf{k}}'^{+-}(\omega, \Delta\omega) G_{\mu\nu\mathbf{k}}'^a(\omega - \Delta\omega/2)] \end{aligned} \quad (10.92)$$

$$+ \sum_{\mu} \int \frac{d\omega}{2\pi i} [G_{c\mu\mathbf{k}}^{r'}(\omega+\Delta\omega/2) \delta\Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}'^{+-}(\omega, \Delta\omega) - G_{c\mu\mathbf{k}}'^{+-}(\omega+\Delta\omega/2) \delta\Sigma_{\mu\nu\mathbf{k}}'^{c,a}(\omega, \Delta\omega)].$$

Zunächst sei die zweite und die dritte Zeile in Gleichung (10.92) betrachtet, in denen die Variation δG der Greenschen Funktionen auftritt. Die Terme $\propto \Sigma_{cv}$ und $\propto \Sigma_{cc}^{+-}$ sind zu vernachlässigen, da diese Selbstenergien von dritter bzw. vierter Ordnung in der optischen Polarisation sind. Die verbleibenden Terme sind

$$+ \int \frac{d\omega}{2\pi i} [\Sigma_{cc\mathbf{k}}'^{c,r}(\omega+\Delta\omega/2) \delta G_{cv\mathbf{k}}'^{+-}(\omega, \Delta\omega)] \quad (10.93)$$

$$+ \int \frac{d\omega}{2\pi i} [\delta G_{cv\mathbf{k}}'^r(\omega, \Delta\omega) \Sigma_{vv\mathbf{k}}'^{+-}(\omega-\Delta\omega/2) - \delta G_{cv\mathbf{k}}'^{+-}(\omega, \Delta\omega) \Sigma_{vv\mathbf{k}}'^{c,a}(\omega-\Delta\omega/2)].$$

Für die Funktionen $\delta G_{cv}'(\omega, \Delta\omega)$ findet man (vgl. Glg. (10.43) und Glg. (10.48))

$$\delta G_{cv\mathbf{k}}'^r(\omega, \Delta\omega) = -\delta p_{\mathbf{k},+}' \left(\frac{1}{\omega + i\delta + \Delta\omega/2 - \epsilon'_{c\mathbf{k}}} - \frac{1}{\omega + i\delta - \Delta\omega/2 - \epsilon'_{v\mathbf{k}}} \right), \quad (10.94)$$

$$\delta G_{cv\mathbf{k}}'^{+-}(\omega, \Delta\omega) = 2\pi i \delta p_{\mathbf{k},+}' \delta(\omega - \Delta\omega/2 - \epsilon'_{v\mathbf{k}}). \quad (10.95)$$

Man erkennt, daß die spektralen Verschiebungen $\Delta\omega/2$ gerade die Ersetzung $\omega_p \rightarrow \omega_t$ bewirken. Dasselbe geschieht in den Selbstenergiefunktionen in dem Ausdruck (10.93). Der Ausdruck (10.93) faßt sich folglich, wie die zweite Zeile von Gleichung (10.59), zusammen zu der Selbstenergiekorrektur

$$(10.93) = \sum_{\mathbf{k}'} \Delta V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\omega_t) \delta p_{\mathbf{k},+}', \quad (10.96)$$

worin $\Delta V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\omega)$ das in Gleichung (10.60) definierte effektive Potential ist. Angesichts dieses Ergebnisses können die Terme in der vierten und fünften Zeile von Gleichung (10.92) nun leicht diskutiert werden. In diesen Beiträgen tritt die Variation

$$\delta \Sigma^c = \delta(G \Delta V_s) \quad (10.97)$$

$$= \delta G \Delta V_s + G \delta \Delta V_s$$

der Korrelationsselbstenergie Σ^c auf. Der Anteil $(\delta G)\Delta V_s$ liefert die zur Selbstenergiekorrektur (10.96) gehörige Vertexkorrektur

$$- \sum_{\mathbf{k}'} \Delta V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(\omega_t) \delta p'_{\mathbf{k}',+}. \quad (10.98)$$

Die Selbstenergiekorrektur (10.96) und die Vertexkorrektur (10.98) führen zusammen auf ein Ergebnis für die Paarselbstenergie, das nahezu identisch ist mit Gleichung (10.86):

$$\Delta H_{nn}^c(\omega_t) = -2 \sum_{i_1 i_2} \frac{\langle np | I | i_1 i_2 \rangle \langle i_2 i_1 | I | pn' \rangle}{\omega_{i_1} + \omega_{i_2} - \omega_p - \omega_t - i\delta}. \quad (10.99)$$

Der einzige Unterschied zwischen den Ausdrücken (10.86) und (10.99) besteht darin, daß in Gleichung (10.99) eine der beiden Frequenzen ω_p im Energienenner durch die Frequenz ω_t ersetzt ist, da die Selbstenergie (10.99) die Streuung eines vom Testfeld erzeugten Exzitons an einem virtuellen Elektron-Loch-Paar beschreibt. Man beachte auch, daß der Spinzustand der Elektron-Loch-Paare, die vom Pumpfeld bzw. vom Testfeld herrühren, verschieden sein kann.

Nun bleiben lediglich noch die Beiträge $G\delta\Delta V_s$ in Gleichung (10.97) zu diskutieren. Hier tritt die Variation innerhalb des Ausdruckes für die dielektrische Funktion auf. Das bedeutet, daß in den von diesem Term beschriebenen Streuprozessen das vom Testfeld erzeugte Exziton seine Rolle mit einem virtuellen Elektron-Loch-Paar vertauscht hat. Demnach handelt es sich bei dem resultierenden Selbstenergiebeitrag um eine Boson-Austauschselfenergie zweiter Ordnung. Die Selbstenergie (10.99) liefert zur Wanniergleichung den Korrelationsbeitrag

$$\sum_{\mathbf{n}'} \Delta H_{nn}^c(\omega_t) \delta p'_{\mathbf{n}',+}. \quad (10.100)$$

Der zugehörige Austauschterm

$$\sum_{n'} \delta H_{nn',+}^c(\omega_t) p_{n'}' \quad (10.101)$$

muß die gesuchte Boson-Austauschselfstenergie liefern. In dem Ausdruck (10.101) ist lediglich nach der Größe p , nicht aber nach p^* zu variieren, denn die Variation nach p^* trägt, wie aus Abschnitt 9.1.5, Glg. (9.35), bekannt ist, nicht zum linearen Stark-Effekt bei. Auf diesem Weg findet man

$$(10.101) = \sum_{n'} \Delta H_{nn'}^{c,x}(\omega_t) \delta p_{n',+}' \quad (10.102)$$

$$\Delta H_{nn'}^{c,x}(\omega_t) = -2 \sum_{i_1 i_2} \frac{\langle np | I | i_1 i_2 \rangle \langle i_2 i_1 | I | n' p \rangle}{\omega_{i_1} + \omega_{i_2} - \omega_p - \omega_t - i\delta} \quad (10.103)$$

In der Austauschselfstenergie $\Delta H^{c,x}$ sind gegenüber dem Beitrag (10.99) lediglich die Positionen des Zustandes $|n'\rangle$ und der optischen Polarisation $|p\rangle$ vertauscht. Mit Hilfe der Symmetrierelation

$$\langle i_1 i_2 | I | i_3 i_4 \rangle = \langle i_2 i_1 | I | i_4 i_3 \rangle, \quad (10.104)$$

die sich aus der Definition (10.81-83) des effektiven Matrixelementes I ergibt, und mit der Bezeichnung

$$\langle i_1 i_2 | J | i_3 i_4 \rangle = \langle i_1 i_2 | I | i_3 i_4 \rangle + \langle i_1 i_2 | I | i_4 i_3 \rangle \quad (10.105)$$

läßt sich das Gesamtergebnis auf eine symmetrische Form bringen:

$$\Delta H_{nn'}^c(\omega_t) + \Delta H_{nn'}^{c,x}(\omega_t) = - \sum_{i_1 i_2} \frac{\langle np | J | i_1 i_2 \rangle \langle i_2 i_1 | J | pn' \rangle}{\omega_{i_1} + \omega_{i_2} - \omega_p - \omega_t - i\delta} \quad (10.106)$$

An Gleichung (10.106) läßt sich das wichtigste Ergebnis dieser Untersuchung sofort ablesen: die Korrelationsselfstenergie (10.106) besitzt für $n=n'$ im Frequenzbereich der

Exzitonresonanz aufgrund der Verstimmung des Pumpstrahles zum Exzitonspektrum keinen Imaginärteil. Denkbar wäre gewesen, daß durch die Streuung der Exzitonen, die vom Teststrahl erzeugt werden, an den virtuellen Ladungsträgern die Exzitonresonanz so stark verbreitert und ausgebleicht wird, daß der optische Stark-Effekt nicht mehr meßbar ist. Das Verschwinden des Imaginärteils der Selbstenergie (10.106) bedeutet aber, daß keine reelle Streuung eines Exzitons an den virtuellen Elektron-Loch-Paaren möglich ist. Ein reeller Streuvorgang ist mit der Anregung eines virtuellen Elektron-Loch-Paares in einen reellen Zustand verbunden. Die hierzu notwendige Energie kann ein vom Teststrahl herrührendes Elektron-Loch-Paar nur besitzen, falls es mit einer ausreichenden Überschußenergie in einem exzitonischen Streuzustand erzeugt wird.

Nun ist klar, daß weder die optische Polarisierung p , die der Pumpstrahl hervorruft und die den Stark-Effekt ausmacht, noch die exzitonische Polarisierung δp , die der Teststrahl verursacht, durch die virtuellen Elektron-Loch-Paare gedämpft werden. Offen ist noch die Frage, ob die Exzitonresonanz infolge der Abschirmung durch virtuelle Elektron-Loch-Paare ausgebleicht werden kann. Denkbar wäre, daß die Korrelationsselfenergie (10.106) eine starke Rotverschiebung der Bandkante und schließlich ein Verschwinden der Exzitonbindungsenergie bewirkt. Das ist jedoch kaum anzunehmen, da virtuelle Elektron-Loch-Paare nur eine sehr schwache dielektrische Abschirmung bewirken. Rechnerisch findet dies seinen Ausdruck darin, daß der Energienenner in der Selbstenergie (10.106) die Verstimmung des Pumpstrahles gegen das Exzitonspektrum enthält. Gegenüber den Hartree-Fock-Beiträgen (9.71) und (9.72) ist dies asymptotisch ein zusätzlicher Faktor $(\omega_1 - \omega_p)^{-1}$. Die nicht ganz einfache numerische Auswertung des Ausdrucks (10.106) wird in unserer Arbeitsgruppe gegenwärtig durchgeführt [63].

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß virtuelle Ladungsträger dem exzitonischen optischen Stark-Effekt weder durch Streuprozesse noch durch Abschirmung entgegenwirken. Der exzitonische Stark-Effekt könnte demnach eventuell auch unter quasistationären Bedingungen, d.h. unter Verwendung von Nanosekunden-Laserpulsen, meßbar sein. Dieser Nachweis wäre deshalb sehr wertvoll, da nur unter quasistationären Bedingungen eine einwandfreie Überprüfung der Theorie und damit ein wirkliches Verständnis der Effekte erzielt werden kann. Entgegen steht dem Nachweis des quasistationären exzitonischen Stark-Effektes, daß bei intensiver nichtresonanter Anregung neben virtuellen Elektron-Loch-Paaren unvermeidlich auch reelle Ladungsträger durch Zweiphotonenabsorption erzeugt werden [95]. Diese Ladungsträger entstehen in exzitonischen Streuzuständen bei Paarenergien von $\omega \approx 2\omega_p$ und sind somit sowohl abschirmend als auch als Streupartner wirksam. Bei hoher Intensität des Pumpstrahles ist zu erwarten, daß diese freien Ladungsträger den optischen Stark-Effekt zerstören. Bei moderater Intensität könnte der Stark-Effekt aber nachweisbar bleiben. Auf der Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, auf der ich meine Theorie im April 1989 vertrat, wurde mir bekannt, daß der exzitonische optische Stark-Effekt unter Verwendung von Nanosekunden-Laserpulsen niedriger Intensität kürzlich tatsächlich nachgewiesen wurde [27].

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] O. Madelung, Festkörpertheorie I-III, Springer, Berlin 1972
- [2] A. S. Dawydow, Quantenmechanik, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1981
- [3] C. Kittel, Einführung in die Festkörpertheorie, Oldenbourg, München 1980
- [4] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla und D. A. B. Miller, Linear and Nonlinear Optical Properties of Semiconductor Quantum Wells, erscheint in Advances in Physics
- [5] G. Bastard und J. A. Brum, IEEE J. Quant. Elec. QE-22, 1625 (1986)
- [6] R. März, Doktorarbeit, Frankfurt am Main 1983
- [7] H. Haken, Quantenfeldtheorie des Festkörpers, Teubner, Stuttgart 1973
- [8] H. Haug, Skript zur Vorlesung Quantenmechanik II, Frankfurt am Main 1986
- [9] G. D. Mahan, Many-Particle Physics, Plenum Press, New York 1981
- [10] R. Zimmermann, Many-Particle Theory of Highly Excited Semiconductors, Teubner, Leipzig 1988
- [11] A. Stahl und I. Balslev, Electrodynamics of the Semiconductor Band Edge, Springer, Berlin 1987
- [12] H. Haug und S. Schmitt-Rink, Progr. Quant. Elec. 9, 3 (1984)
- [13] H. Haken, Laser Theory, Springer, Berlin 1983
- [14] J. S. Weiner, D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, C. A. Burrus, T. H. Wood, A. C. Gossard und W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett. 47, 1148 (1985),
D. A. B. Miller, J. S. Weiner und D. S. Chemla, IEEE J. Quant. Elec. QE-22, 1816 (1986)
- [15] M. Joffre, D. Hulin, A. Migus und M. Combescot, Phys. Rev. Lett. 62, 74 (1989)
- [16] J. Callaway, Quantum Theory of the Solid State, Academic Press, New York 1974
- [17] L. P. Kadanoff und G. Baym, Quantum Statistical Mechanics, Benjamin, New York 1962
- [18] A. L. Fetter und J. D. Walecka, Quantum Theory of Many-Particle Systems, McGraw-Hill, New York 1971
- [19] S. Schmitt-Rink und D. S. Chemla, Phys. Rev. Lett. 57, 2752 (1986)
- [20] R. Zimmermann, Phys. Stat. Sol. B 146, 545 (1988)
- [21] J. Liebler, Diplomarbeit, Frankfurt am Main 1985
- [22] W. H. Knox, J. Opt. Soc. Am. B 4, 1771 (1987)
- [23] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla und H. Haug, Phys. Rev. B 37, 941 (1988)
- [24] A. Mysyrowicz, D. Hulin, A. Antonetti und H. Morkoc, Phys. Rev. Lett. 56, 2748 (1986)
- [25] A. Von Lehmen, D. S. Chemla, J. E. Zucker und J. P. Heritage, Opt. Lett. 11, 609 (1986)
- [26] M. Joffre, D. Hulin und A. Antonetti, J. de Physique C5, 537 (1987)
- [27] C. Klingshirn, Mitteilung auf der Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft in Münster, April 1989
- [28] C. Kittel und H. Krömer, Physik der Wärme, Oldenbourg, München 1984
- [29] H. J. Polland, W. W. Rühle, J. Kuhl, K. Ploog, K. Fujiwara und T. Nakayama, Phys. Rev. B 35, 8273 (1987)
- [30] Y. R. Shen, The Principles of Nonlinear Optics, Wiley, New York 1984
- [31] S. W. Koch, H. E. Schmidt und H. Haug, Appl. Phys. Lett. 45, 932 (1984)

- [32] H. M. Gibbs, *Optical Bistability: Controlling Light with Light*, Academic Press, New York 1985
- [33] K. Henneberger und H. Haug, *Phys. Rev. B* 38, 9759 (1988)
- [34] E. Hanamura, *Sol. St. Comm.* 12, 951 (1973)
- [35] D. Hulin, A. Mysyrowicz und C. Benoit a la Guillaume, *Phys. Rev. Lett.* 45, 1970 (1980)
- [36] N. Peyghambarian, L. L. Chase und A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. B* 27, 2325 (1983)
- [37] W. H. Knox, R. L. Fork, M. C. Downer, D. A. B. Miller, D. S. Chemla, C. V. Shank, A. L. Gossard und W. Wiegmann, *Phys. Rev. Lett.* 54, 1306 (1985)
- [38] W. H. Knox, C. Hirlimann, D. A. B. Miller, J. Shah, D. S. Chemla und C. V. Shank, *Phys. Rev. Lett.* 56, 1191 (1986)
- [39] R. L. Greene, K. K. Bajaj und D. E. Phelps, *Phys. Rev. B* 29, 1807 (1984)
- [40] H. Haug in 'Optical Nonlinearities and Instabilities in Semiconductors', Herausgeber H. Haug, Academic Press, New York 1988
- [41] W. Schäfer und J. Treusch, *Z. Phys. B* 63, 407 (1986)
- [42] K. Henneberger, G. Manzke, V. May und R. Zimmermann, *Physica* 138 A, 557 (1986)
- [43] A. L. Ivanov und L. V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* 57, 234 (1983)
- [44] J. F. Müller, R. Mewis und H. Haug, *Z. Phys. B* 69, 231 (1987),
H. Haug, J. F. Müller und R. Mewis, *J. Lumin.* 38, 239 (1987)
- [45] P. Danielewicz, *Ann. Phys.* 152, 239 (1984)
- [46] W. Hänsch und G. D. Mahan, *Phys. Rev. B* 28, 1902 (1983)
- [47] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik V*, Akademie-Verlag, Berlin 1979
- [48] L. V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* 20, 1018 (1965)
- [49] G. Traenkle, H. Leier, A. Forchel, H. Haug, C. Ell, S. Schmitt-Rink und G. Weinmann, *Phys. Rev. Lett.* 58, 419 (1987)
- [50] H. Haug und S. Schmitt-Rink, *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A* 313, 221 (1984)
- [51] H. Haug und S. W. Koch, *Phys. Rev. A* 39, 1887 (1989)
- [52] R. P. Feynman, *Phys. Rev.* 76, 749 (1949)
- [53] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik IX*, Akademie-Verlag, Berlin 1980
- [54] N. D. Mermin, *Phys. Rev. B* 1, 2362 (1970)
- [55] R. Kragler und H. Thomas, *Z. Phys. B* 39, 99 (1980)
- [56] D. Pines und P. Nozieres, *The Theory of Quantum Liquids*, Benjamin, New York 1966
- [57] B. I. Lundquist, *Phys. kondens. Mat.* 6, 193 (1967)
- [58] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik X*, Akademie-Verlag, Berlin 1983
- [59] R. Kragler, *Physica* 102 A, 22 (1980)
- [60] P. Nobis, *Diplomarbeit*, Frankfurt am Main 1988
- [61] J. F. Müller, S. Schmitt-Rink und A. F. Levi, *Appl. Phys. Lett.* 52, 236 (1988)
- [62] J. F. Müller, A. F. Levi und S. Schmitt-Rink, *Phys. Rev. B* 38, 9843 (1988)
- [63] K. El Sayed, *Diplomarbeit*, Frankfurt am Main
- [64] H. Schweizer, A. Forchel, A. Hangleiter, S. Schmitt-Rink, J. P. Löwenau und H. Haug, *Phys. Rev. Lett.* 51, 698 (1983)
- [65] J. P. Löwenau, S. Schmitt-Rink und H. Haug, *Phys. Rev. Lett.* 49, 1511 (1982)
- [66] S. Schmitt-Rink, C. Ell und H. Haug, *Phys. Rev. B* 33, 1183 (1986)
- [67] C. Ell, R. Blank, S. Benner und H. Haug, eingereicht bei *J. Opt. Soc. Am. B*
- [68] H. Haug, D. B. Tran Thoai, *Phys. Stat. Sol. B* 98, 581 (1980),
S. Schmitt-Rink, *Diplomarbeit*, Frankfurt am Main 1980
- [69] J. F. Müller, *Diplomarbeit*, Frankfurt am Main 1985
- [70] R. Zimmermann, *Phys. Stat. Sol. B* 146, 371 (1988)
- [71] E. O. Göbel, P. H. Liang und D. von der Linde, *Sol. St. Comm.* 37, 609 (1981)
- [72] H. Saito, *Sol. St. Comm.* 39, 71 (1981)

- [73] H. Saito und E. O. Göbel, Phys. Rev. B 31, 2360 (1985)
- [74] J. F. Müller und H. Haug, J. Lumin. 37, 97 (1987)
H. Haug, J. F. Müller und J. Liebler, J. Lumin. 40/41, 605 (1988)
- [75] H. Haug, J. Lumin. 30, 171 (1985)
- [76] W. F. Brinkman und P. A. Lee, Phys. Rev. Lett. 31, 237 (1973)
- [77] R. Zimmermann und M. Rösler, Phys. Stat. Sol. B 75, 633 (1976)
- [78] G. Beni und T. M. Rice, Phys. Rev. B 18, 768 (1978)
- [79] T. M. Rice, Nuovo Cimento 23 B, 226 (1974)
- [80] International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors, November 1987, Bad Stuer, DDR
- [81] G. Khitrova, J. F. Valley und H. M. Gibbs, Phys. Rev. Lett. 60, 1126 (1988)
- [82] I. Balslev, R. Zimmermann und A. Stahl, Two-Band Density Matrix Approach to Nonlinear Optics of Excitons, Vorabdruck, eingereicht bei Phys. Rev. B, April 1989
- [83] T. Wicht, Doktorarbeit, Frankfurt am Main
- [84] L. Allen und J. H. Eberly, Optical Resonance and Two-Level Atoms, Wiley, New York 1975
- [85] C. Comte und G. Mahler, Phys. Rev. B 34, 7164 (1986)
- [86] C. Ell, J. F. Müller, K. El Sayed und H. Haug, Phys. Rev. Lett. 62, 304, (1989),
H. Haug, C. Ell, J. F. Müller und K. El Sayed in 'Optical Switching in Low-Dimensional Systems', Herausgeber H. Haug und L. Banyai, Plenum Press, London 1989
- [87] W. Schäfer in 'Festkörperprobleme 28', Herausgeber U. Rössler, Vieweg, Wiesbaden 1988
- [88] F. Boldt, K. Henneberger und V. May, Phys. Stat. Sol. B 130, 675 (1985)
- [89] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla und D. A. B. Miller, Phys. Rev. B 32, 6601 (1985)
- [90] H. Haug, Z. Phys. B 24, 351 (1976)
- [91] R. Zimmermann und M. Hartmann, Phys. Stat. Sol. B 150, 365 (1988)
- [92] M. Lindberg und S. W. Koch, Phys. Rev. B 38, 3342 (1988)
- [93] C. Ell, J. F. Müller, K. El Sayed und H. Haug, Phys. Stat. Sol. B 150, 393 (1988)
- [94] R. Cote und H. Haug, Effect of Virtual Screening on the Absorption Spectrum of a Coherently Pumped Semiconductor, erscheint in Phys. Rev. B
- [95] W. H. Knox, D. S. Chemla, D. A. B. Miller, J. B. Stark und S. Schmitt-Rink, Phys. Rev. Lett. 62, 1189 (1989)

Danksagung

Hiermit möchte ich mich bei meinem Diplom- und Doktorvater Prof. Dr. H. Haug sehr herzlich bedanken für die freundliche Aufnahme in seiner Arbeitsgruppe, für sein Interesse an meiner Arbeit und für seine zahlreichen Ratschläge und Ermutigungen. Besonders möchte ich mich bei ihm auch für die Freistellung zu meinem Forschungsaufenthalt bei den Bell Laboratories in den Vereinigten Staaten bedanken. Dr. S. Schmitt-Rink schulde ich großen Dank für die Ermöglichung meines Forschungsaufenthaltes bei den Bell Laboratories und für seine Gastfreundschaft und seine Betreuung während dieser Zeit. Ihm verdanke ich auch viele wertvolle Hinweise zu meiner späteren Arbeit. Ebenfalls bedanken möchte ich mich bei meinen Kollegen C. Ell, K. El Sayed und R. Mewis für die gute Zusammenarbeit zu unseren gemeinsamen Publikationen. Auch allen übrigen Angehörigen unserer Arbeitsgruppe, insbesondere meinen Zimmerkameraden T. Wicht und S. Benner, danke ich für die gute Arbeitsatmosphäre.

Lebenslauf

Geboren am: 15. Oktober 1960 in Gelnhausen

Schulzeit: 1966-1969 Philipp-Reis-Schule Gelnhausen
1970-1979 Grimmelshausen-Gymnasium Gelnhausen

Studienbeginn: Oktober 1979, Studium der Physik und der Mathematik an der J. W. Goethe-Universität in Frankfurt am Main

Vordiplom: Juli 1981

Diplom: September 1985

Titel der Diplomarbeit: Zur Vielteilchentheorie von Halbleiterlasern

Gutachter: Prof. Dr. H. Haug und Prof. Dr. R. Jelitto

Berufliche Tätigkeit: Seit Oktober 1985 wissenschaftlicher Angestellter am Institut für Theoretische Physik der Universität Frankfurt

Thema der Dissertation: Die Vielteilchentheorie optisch angeregter Halbleiter

Doktorvater: Prof. Dr. H. Haug

Auslandsaufenthalt: Von Juli bis September 1987 Forschungsaufenthalt bei AT&T Bell Laboratories in New Jersey, USA.

